J Daubert

Frankfurt am Main 1973

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41523706_0033

Phononendispersion in CsBr

Inaugural - Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften
vorgelegt beim Fachbereich Physik
der Johann Wolfgang Goethe - Universität
zu Frankfurt am Main

von
J o a c h i m D a u b e r t
aus Zwickau

Frankfurt am Main, 1973

Gedruckt mit Genehmigung des Fachbereiches Physik

der Johann Wolfgang Goethe - Universität, Frankfurt am Main.

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

Dekan:	Prof. W. Jung
Erster Berichterstatter:	Prof. Dr. E. Schopper
Zweiter Berichterstatter:	Prof. Dr. H. Bilz

Tag der mündlichen Prüfung: 4. Juni 1973

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung	1
2. Messung von Phononen durch unelastische Neutronenstreuung	3
2.1 Wirkungsquerschnitt für kohärente Ein-Phononen-Streuung	3
2.2 Experimentelles	5
2.21 Meßprinzip	5
2.22 Bestimmung der optimalen Einstellung	8
2.23 Flugzeitmethode	9
2.24 Pseudostatistische Flugzeitmethode	11
2.25 Beschreibung der Meßapparatur	19
2.26 Auswertung der Meßdaten	21
2.27 Ergebnisse	23
3. Diskussion der Ergebnisse	33
3.1 Vergleich mit anderen Messungen	33
3.11 Neutronenstreuung	33
3.12 Optische Messungen	33
3.2 Vergleich mit verschiedenen Modellrechnungen	35
3.21 Gitterdynamik	35
3.22 Modifiziertes Rigid Ion Model	37
3.23 Modelle nach Karo und Hardy	40
3.24 Breathing Shell Model	41
4. Berechnung der Frequenzverteilung und der spezifischen Wärme	51
4.1 Phononenfrequenzverteilung	51
4.2 Spezifische Wärme	51
5. Zusammenfassung	54
6. Anhang	55
7. Literaturverzeichnis	59

1. Einleitung

Die Streuung von langsamen Neutronen ist eine der leistungsfähigsten Methoden zum Studium der Struktur und Dynamik kondensierter Materie.

Neutronen sind ladungsneutral und können deshalb direkt mit den Atomkernen in Wechselwirkung treten. Als relativ intensive Neutronenquellen stehen Reaktoren zur Verfügung, bei denen das Maximum des Neutronenspektrums im wesentlichen durch die Temperatur des Moderators bestimmt wird, es liegt meist bei 40 meV. Das entspricht einer Wellenlänge der Neutronen von etwa 1.4 Å. Für viele Streuexperimente ist die Intensität im Bereich von 5 Å bis 0.7 Å noch ausreichend. Die Wellenlängen sind also von der Größenordnung der Atomabstände, und außerdem können die Neutronenenergien vergleichbar mit den Gitterenergien gewählt werden, so daß Änderungen der Neutronenenergie bei unelastischen Stößen gut meßbar sind.

Diese Arbeit beschreibt Experimente, mit denen durch kohärente unelastische Neutronenstreuung die Phononendispersion in CsBr ermittelt wurde. Obwohl die Gitterdynamik von Alkalihalogeniden mit NaCl Struktur theoretisch und experimentell an verschiedenen Substanzen untersucht worden war, gab es nur verschiedene theoretische Modellrechnungen für Alkalihalogenide mit CsCl Struktur, darunter auch für CsBr, als diese Experimente begonnen wurden. Inzwischen sind Messungen der Dispersion in CsJ von Eldridge /1/ mit Röntgenstrahlung und von Bührer und Hälg /2/ mit Neutronen durchgeführt worden. Außerdem haben Rolandson und Raunio /3/ gleichzeitig und unabhängig CsBr untersucht. Ihre Experimente unterscheiden sich im Meßverfahren - es wurde ein Dreiachsspektrometer benutzt - und im Temperaturbereich - fast alle Messungen wurden bei 80°K vorgenommen.

Neben einigen theoretischen Grundlagen zur unelastischen Neutronenstreuung werden die Experimente zur Ermittlung der Phononendispersion beschrieben. Im Unterschied zu allen anderen Arbeiten an Alkalihalogeniden mit CsCl Struktur wurden in der vorliegen-

den Untersuchung viele Phononen auch außerhalb der Hauptsymmetrierichtungen vermessen. Die Ergebnisse werden mit anderen Experimenten und den Resultaten einiger wichtiger Modellrechnungen verglichen. Mit einem an die Messungen angepaßten Modell wird die Frequenzverteilung und die spezifische Wärme von CsBr berechnet.

2. Messung von Phononen durch unelastische Neutronenstreuung

2.1 Wirkungsquerschnitt für kohärente Ein-Phononen-Streuung

Die Streuung langsamer Neutronen an den Kernen eines Vielteilchensystems läßt sich erfolgreich mit der Methode der Born'schen Näherung behandeln, wenn man zur Beschreibung der Wechselwirkung mit den Kernen das Fermi'sche Pseudopotential, das wegen der kurzen Reichweite der Kernkräfte als Deltafunktion angesetzt wird, benutzt.

Bei einem dynamischen System sind die Ortskoordinaten der Atomkerne Funktionen der Zeit. Im Falle der Streuung an einem Kristall lassen sie sich aufspalten in die Koordinaten der Ruhelagen und momentane Auslenkungen. Der doppelt differentielle Wirkungsquerschnitt pro Raumwinkel- und Energieintervall kann nach Potenzen der Auslenkungen entwickelt werden. Man erhält dann Wirkungsquerschnitte für die elastische Streuung, die Ein-Phononen-Streuung und Mehrphononenstreuungen. Der Streuquerschnitt für die kohärente Ein-Phononen-Streuung ist /4/

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega\, d\varepsilon}\right)_{\substack{1\text{ Phonon,}\\ \text{kohärent}}} = \frac{(2\pi)^3}{V}\,\frac{k}{k_0}\left\{\frac{\hbar}{2ZN_1}\sum_{q,j}\frac{1}{\omega_{q,j}}\left|\sum_{\kappa}\frac{b_\kappa^{coh}}{\sqrt{m_\kappa}}\,e^{-W_\kappa}\,\vec{Q}\vec{e}(\kappa\,|\,{}^{q}_{j})\,e^{i\vec{Q}\vec{x}(\kappa)}\right|^2\right\}$$

$$\cdot\left[\,n(\omega_{q,j})+\tfrac{1}{2}\pm\tfrac{1}{2}\,\right]\cdot\delta(\varepsilon\pm\hbar\omega_{q,j})\cdot\delta(\vec{Q}\pm\vec{q}-\vec{G}) \qquad (2.1)$$

Es bedeuten

$\vec{k}_o, \vec{k}$ - Wellenzahlvektoren der Neutronen vor und nach der Streuung

$\hbar\vec{Q}$ - Impulsänderung des Neutrons bei der Streuung:

$\hbar\vec{Q} = \hbar(\vec{k} - \vec{k}_0)$

ε - Energieänderung des Neutrons bei der Streuung

$$\varepsilon = \frac{\hbar^2}{2m}(k^2 - k_0^2)$$

$\vec{q}$ - Wellenzahlvektor des Phonons

$\omega_{q,j}$ - Frequenz des Phonons

$\vec{G}$ - Ortsvektor eines Gitterpunktes im reziproken Gitter

$\vec{e}$ - Polarisationsvektor des Phonons

$\vec{x}$ - Ortsvektor eines Atoms in der Elementarzelle

κ - Index des Atoms in der Elementarzelle (z.B. Cs=1, Br=2)

j - Index des Dispersionszweiges

m - Atommasse

Z - Anzahl der Atome in der Einheitszelle

N_1 - Anzahl der Einheitszellen

b^{coh} - kohärente Streulänge

W - Debye-Waller Faktor

n - thermische Besetzungszahl, $n = \frac{1}{e^{\beta\hbar\omega}-1}$ mit $\beta = \frac{1}{k_B T}$,

k_B - Boltzmannkonstante und T - Probentemperatur

V - Volumen der Einheitszelle

Die beiden δ-Funktionen zeigen, daß nur bei gleichzeitiger Erhaltung der Gesamtenergie

$$\frac{\hbar^2}{2m}(k^2 - k_0^2) = \mp \hbar\omega_{q,j} \qquad (2.2)$$

und des Quasiimpulses

$$\hbar(\vec{k} - \vec{k}_0) = \hbar(\vec{G} \mp \vec{q}) \qquad (2.3)$$

der Wirkungsquerschnitt nicht verschwindet. Das ist sowohl bei der Erzeugung eines Phonons, verbunden mit einem Energieverlust der Neutronen, möglich, als auch bei Phononenvernichtung, wobei die Neutronen Energie vom Kristall übernehmen. Die oberen Vorzeichen gelten für Phononenerzeugung.

Sind bei einer Messung die Bedingungen (2.2) und (2.3) gleichzeitig erfüllt, so wird die Intensität der gestreuten Neutronen im wesentlichen durch den Wert des Ausdrucks

$$\sum_{\kappa} \left| \frac{\hbar}{2\, ZN_1 \omega_{q,j} m_\kappa} \right|^{\frac{1}{2}} b_\kappa^{coh}\; e^{-W_\kappa}\; \vec{Q}\vec{e}(\kappa|{}^{q}_{j})\; e^{i\vec{Q}\vec{x}(\kappa)} \qquad (2.4)$$

in der geschweiften Klammer von (2.1) bestimmt, den man inelastischen Strukturfaktor nennt. Die Intensität hängt einmal stark davon ab, wie die von den einzelnen Streuzentren der Elementarzelle ausgehenden Wellen miteinander interferieren, das bestimmt den Wert der Summe über die Phasenfaktoren. Außerdem zeigt das Skalarprodukt $\vec{Q}\vec{e}$, daß eine Wechselwirkung nur mit Gitterschwingungen möglich ist, deren Auslenkungen nicht senkrecht zum Impulsübertrag gerichtet sind. Dadurch hat man bei Kenntnis der Richtung von $\vec{e}$ die Möglichkeit, die Einstellung für Phononen einer Polarisation (z.B. longitudinal) optimal zu wählen und Phononen der unerwünschten Polarisation (z.B. transversal) zu unterdrücken. Bei gleicher Richtung von $\vec{Q}$ und $\vec{e}$ kann der Wert des an benachbarten Punkten im reziproken Gitter berechneten Strukturfaktors abwechselnd für optische und für akustische Phononen größer sein, wodurch sich eine weitere Möglichkeit ergibt, auf Phononen eines bestimmten Zweiges zu "zielen".

2.2 Experimentelles

2.21 Meßprinzip

Die Energie eines Phonons kann nach Gleichung (2.2) durch Bestimmung der Neutronenenergie vor und nach dem Streuprozeß gemessen werden. Um auch den zugehörigen Wellenzahlvektor $\vec{q}$ ermitteln zu können, muß als Probe ein Einkristall verwendet werden, dessen Orientierung gegenüber dem einfallenden Neutronenstrahl genau definiert ist. Außerdem ist es nötig, die Richtung der gestreuten Neutronen, und damit den Streuwinkel zu messen.

Abb. 1 stellt das Prinzip der Messung an einem Beispiel dar. Ein Strahl von Neutronen, die alle die gleiche Energie haben, gekennzeichnet durch die Wellenzahl k_0, trifft auf die einkristalline Streuprobe, deren reziprokes Gitter angedeutet ist. Sie ist so orientiert, daß der einfallende Neutronenstrahl in der Streuebene mit einer bestimmten Kristallrichtung [hkl] den Winkel α bildet. Unter dem Winkel θ gegenüber dem einfallenden Strahl registriert man mit einem Detektor die Intensität als Funktion der Energie der gestreuten Neutronen. Man mißt ein Maximum, wenn gleichzeitig beide Beziehungen (2.2) und (2.3) erfüllt sind. Der Peak hat gegenüber den δ-Funktionen in (2.1) eine endliche Breite, weil die Auflösung des Spektrometers, die Mosaikbreite des Probenkristalles und die Lebensdauer der Phononen bei der Ableitung von (2.1) nicht berücksichtigt wurden.

Aus der Lage des Peaks im Energie- bzw. Flugzeitspektrum kann die Geschwindigkeit der gestreuten Neutronen ermittelt werden, aus der sich der Betrag des Vektors $\vec{k}$ ergibt. Der Wellenzahlvektor $\vec{q}$ des gesuchten Phonons, reduziert auf die erste Brillouin Zone, liegt zwischen dem Endpunkt von $\vec{Q}$ und dem nächstgelegenen Punkt im reziproken Gitter, im Beispiel (2 2 $\bar{2}$). Aus k_0 und k wird über (2.2) die Phononenenergie errechnet.

Bei der in Abb. 1 dargestellten Messung wurde außerdem im gleichen Detektor eine weitere Neutronengruppe beobachtet, die einem Phononenvernichtungsprozeß ($k > k_0$) entsprach. Der Phononenwellenzahlvektor ist mit $\vec{q}_v$ gekennzeichnet. Die Endpunkte der Phononenwellenzahlvektoren, die mit den benachbarten Detektoren registriert wurden, sind nur angedeutet. Man sieht, daß es bei der dargestellten Einstellung zufällig möglich war, in Phononenerzeugung gleichzeitig 6 verschiedene Phononen desselben Zweiges zu messen, deren Vektoren $\vec{q}$ alle praktisch in der Hauptsymmetrierichtung [111] liegen.

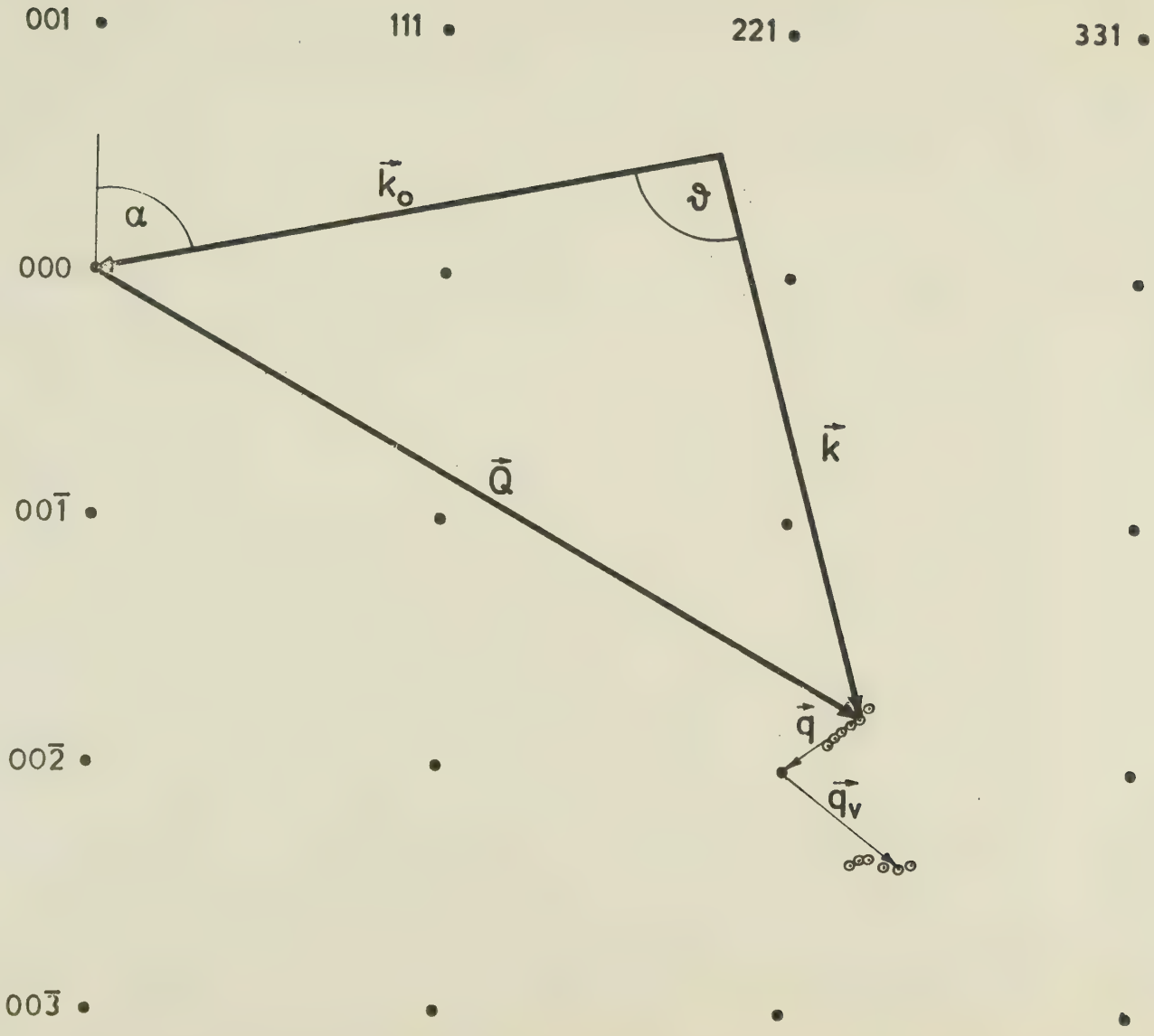


Abb. 1 (110) - Ebene des reziproken Gitters von CsBr mit Meßbeispiel

2.22 Bestimmung der optimalen Einstellung

Die Messung eines Phonons mit der Frequenz $\omega(q,j)$ und dem Wellenzahlvektor $\vec{q}$ kann an verschiedenen Punkten im reziproken Gitter vorgenommen werden. Außerdem gibt es an jedem Gitterpunkt zwei Einstellungsmöglichkeiten für Phononenerzeugungs- und zwei für Phononenvernichtungsprozesse. Da die Intensität der gestreuten Neutronengruppen stark von der gewählten Einstellung abhängt, bedeutet die richtige Wahl oft eine wesentliche Ersparnis an Meßzeit.

Die Einfallsenergie E_0 wurde möglichst nahe dem Intensitätsmaximum des Reaktorspektrums gewählt. Es zeigte sich jedoch, daß bei dieser Energie die Auflösung nicht immer ausreichend war. Deshalb wurden ergänzende Messungen bei niedrigeren Energien mit besserer Auflösung aber geringerer Intensität durchgeführt. Die verwendeten Einfallsenergien waren 40.5 meV, 37.7 meV, 29.6 meV, 17.7 meV und 10.1 meV.

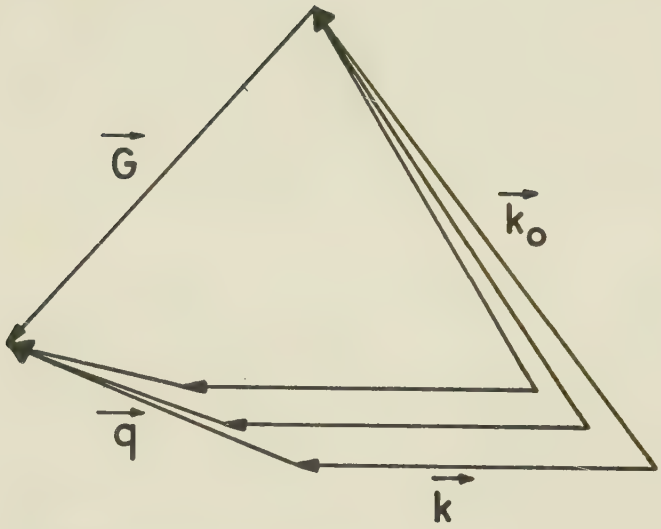
Bei festgelegter Einfallsenergie E_0 war mit der Länge des Vektors $\vec{k}_0$ auch eine Anzahl von Punkten im reziproken Gitter vorgegeben, die allein für die Messung in Frage kamen. Unter diesen Punkten wurde mit Hilfe von (2.4) der Gitterpunkt mit dem größten inelastischen Strukturfaktor ermittelt. Dazu war es nötig, die Polarisationsvektoren $\vec{e}(\kappa|\frac{q}{j})$ zu kennen. Für ihre Berechnung wurde das in Abschnitt 3.24 näher erläuterte Breathing Shell Model benutzt. Oft konnte die Berechnung des inelastischen Strukturfaktors auf Phononenerzeugungsprozesse beschränkt werden, weil nur für solche die Auflösung den geforderten Ansprüchen genügte. Bei sonst unverändertem Versuchsaufbau ließ sich für Phononenerzeugungsprozesse eine wesentlich bessere Energieauflösung erreichen, als für Phononenvernichtungsprozesse. Die Unsicherheit des Startzeitpunktes der Neutronen am Chopper Δt ist für beide Prozesse gleich. Da bei einem Phononenerzeugungsprozeß das Neutron Energie verliert, wird seine Flugzeit t größer als bei einem entsprechenden Phononenvernichtungsprozeß, bei dem es Energie gewinnt. Der Quotient $\Delta t/t$ wird also kleiner und die Auflösung besser.

War auf die beschriebene Weise bestimmt, an welchem Gitterpunkt und durch welchen Prozeß das Phonon gemessen werden sollte, so wurde unter den beiden möglichen Einstellungen die "fokussierende" gewählt /5/. Dabei nutzt man die Winkeldivergenz des einfallenden Strahles und den Mosaikspread des Monochromators aus, um die Schärfe und Höhe des Phononenpeaks zu verbessern. In Abb. 2 sind die beiden Anteile für den Fall dargestellt, daß in Phononenerzeugung gemessen wird und mit wachsendem Wellenzahlvektor $\vec{q}$ auch die Frequenz $\omega(\vec{q})$ der Phononen zunimmt.

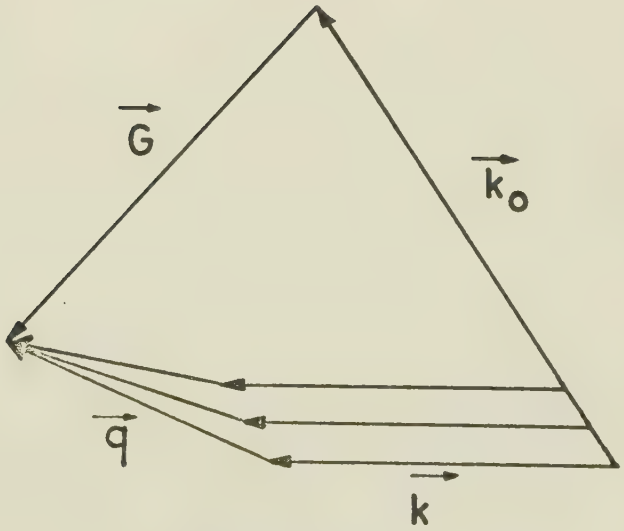
Allein durch die Winkeldivergenz des Strahles, der auf den Monochromator auftrifft, wird - auch ohne Mosaikspread des Monochromatorkristalles - eine Unschärfe in Richtung und Betrag der Wellenzahlvektoren $\vec{k}_o$ erzeugt. Durch die geeignete Wahl der Streugeometrie versucht man in der fokussierenden Einstellung möglichst viele Neutronen für Streuprozesse zu nutzen, die alle zum gleichen Wellenzahlvektor $\vec{k}$ der gestreuten Neutronen führen, im Experiment also alle im gleichen Kanal des Flugzeitspektrums registriert werden. Für etwas langsamere Neutronen gelingt das, wenn die Geometrie so gewählt wird, daß dem geringeren Energieübertrag ein kleinerer Phononenwellenzahlvektor entspricht, und zwar gerade so, daß auch für diese Neutronen der Wirkungsquerschnitt nicht verschwindet. Entsprechendes gilt für etwas schnellere Neutronen. In defokussierender Einstellung würde ein breiterer Peak mit derselben integralen Intensität gemessen werden. Betrachtet man die Auswirkung des Mosaikspreads des Monochromators allein, so gilt eine völlig analoge Überlegung. Im Experiment wird immer eine Überlagerung beider Effekte vorliegen.

2.23 Flugzeitmethode

Im Experiment wurde die Bestimmung der Phononenfrequenzen auf eine Messung der Flugzeit, und damit der Energie der gestreuten Neutronen zurückgeführt.



a) Einfluß der Winkeldivergenz
des einfallenden Strahls



b) Einfluß des Mosaikspreads
des Monochromators

Abb. 2 Fokussierungsmöglichkeiten (nach Brockhouse /5/)

Ein Chopper, der den kontinuierlichen Neutronenstrahl des Reaktors in einzelne Pulse zerhackt, legt dadurch den Startzeitpunkt der Neutronen fest. Durch Braggreflexion an einem Monochromator-Einkristall wird ein gepulster monochromatischer Neutronenstrahl erzeugt, der auf die Streuprobe trifft. Der Startzeitpunkt der gestreuten Neutronen an der Probe ist somit bekannt.

Die Detektoren sind an einen Flugzeitanalysator angeschlossen, der einen Startpuls vom Chopper erhält. Wird in einem Detektor ein Neutron nachgewiesen, so erhöht der Flugzeitanalysator den Inhalt des Kanals, der der Flugzeit des Neutrons entspricht, um eins. Im Flugzeitspektrum kann die Intensität als Funktion der Flugzeit der Neutronen für den Weg von der Probe zum Detektor abgelesen werden. Daraus lassen sich die Energien der gestreuten Neutronengruppen errechnen.

2.24 Pseudostatistische Flugzeitmethode

Bei der konventionellen Flugzeitmethode öffnet der Chopper den Neutronenstrahl für einen kurzen Puls und schließt ihn dann für relativ lange Zeit. Das ist nötig, damit die registrierten Detektorimpulse eindeutig zugeordnet werden können. Es soll vermieden werden, daß im Flugzeitspektrum unelastisch gestreute Neutronen überlappen, die aus verschiedenen Chopperpulsen stammen. Bei konventionellen Flugzeitexperimenten beträgt deshalb die zeitliche Ausnutzung des Reaktorstrahls nur etwa 1%.

Bei der pseudostatistischen Flugzeitmethode /6/ läßt man diese Überlappung zu und erreicht dadurch eine zeitliche Ausnutzung bis 50%. Um trotzdem die registrierten Neutronen eindeutig den verschiedenen Chopperpulsen zuzuordnen und damit ihre Flugzeit festzulegen, muß eine mathematische Entfaltung des aufgenommenen Spektrums mit der Signalfunktion des Choppers vorgenommen werden. Die Signalfunktion S_i gibt an, in welcher Folge das Chopperfenster geöffnet und geschlossen wurde. Wenn die Signalfunktion

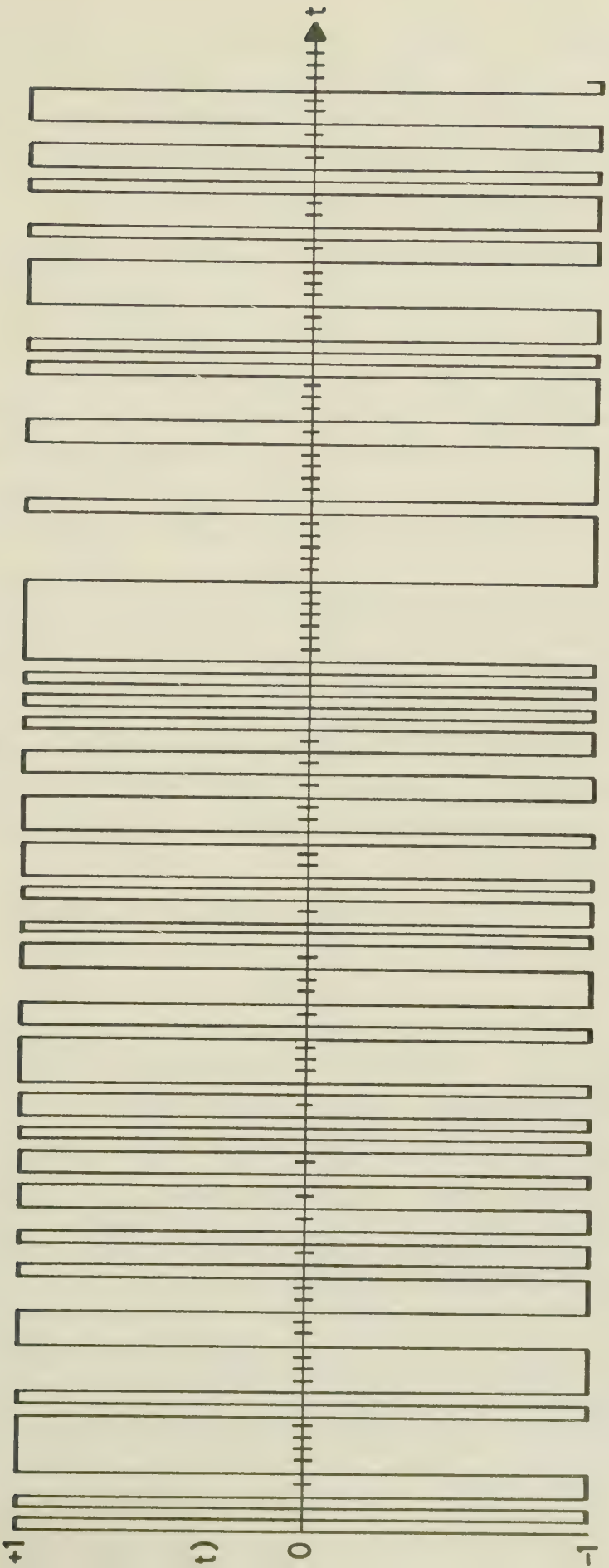


Abb. 3 Signalfunktion N = 127

des Choppers einer bestimmten Klasse von Funktionen angehört, die man "pseudostatistisch" nennt, so kann die Zuordnung eindeutig getroffen werden /7/. Mit Hilfe der Informationstheorie können pseudostatistische Folgen für verschiedene Schrittzahlen N und mit verschiedenem Durchlaß angegeben werden /8/.

Abb. 3 zeigt die Folge, die bei den Messungen an CsBr verwendet wurde. Sie besteht aus 127 Einheitsschritten, ihr Durchlaß beträgt 50%. Als Chopper benutzt man eine Aluminiumscheibe, die sich um eine Achse parallel zum Neutronenstrahl dreht. Am Rand der Scheibe sind entsprechend der Folge stark absorbierende Plättchen aus Gadoliniumoxid aufgeklebt, die den Neutronenstrahl modulieren. Im Experiment wurde die Drehzahl so gewählt, daß ein Einheitsschritt einem Zeitintervall von $\Delta\tau = 30\mu sec$ entsprach.

Als direktes Ergebnis einer Messung mit dem pseudostatistischen Chopper erhält man im Flugzeitanalysator eine Zählratenverteilung Z_i, bei der in jedem Kanal Impulse aufsummiert sind, die im allgemeinen wegen der Überlappung Neutronen mit ganz verschiedenen Flugzeiten entsprechen. Die wirkliche Flugzeitverteilung F_k berechnet man, indem man die Kreuzkorrelation zwischen der Zählratenverteilung Z_i und der Signalfunktion S_i bildet

$$F_k = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} S_i \, Z_{i+k}$$

Würde, als einfachstes Beispiel, nur ein Peak mit einer Flugzeit, die z.B. 100 Kanälen entspricht, gemessen, so enthält Z_i (zyklisch) zu jeder Öffnung des Choppers um 100 Kanäle verschoben einen Peak. Insgesamt zeigt also Z_i sehr viele Peaks. Bei Ausführung der Kreuzkorrelation erhält man die maximale Korrelation für $k = 100$, daneben gibt es zufällige Korrelationen für die anderen Werte von k. Pseudostatistische Signalfunktionen haben die Eigenschaft, daß diese zufälligen Korrelationen für alle übrigen Kanäle exakt gleich sind, also einen gleichmäßigen Untergrund darstellen. Das Ergebnis der Kreuzkorrelation ist ein Peak bei $k = 100$ über einem konstanten Untergrund.

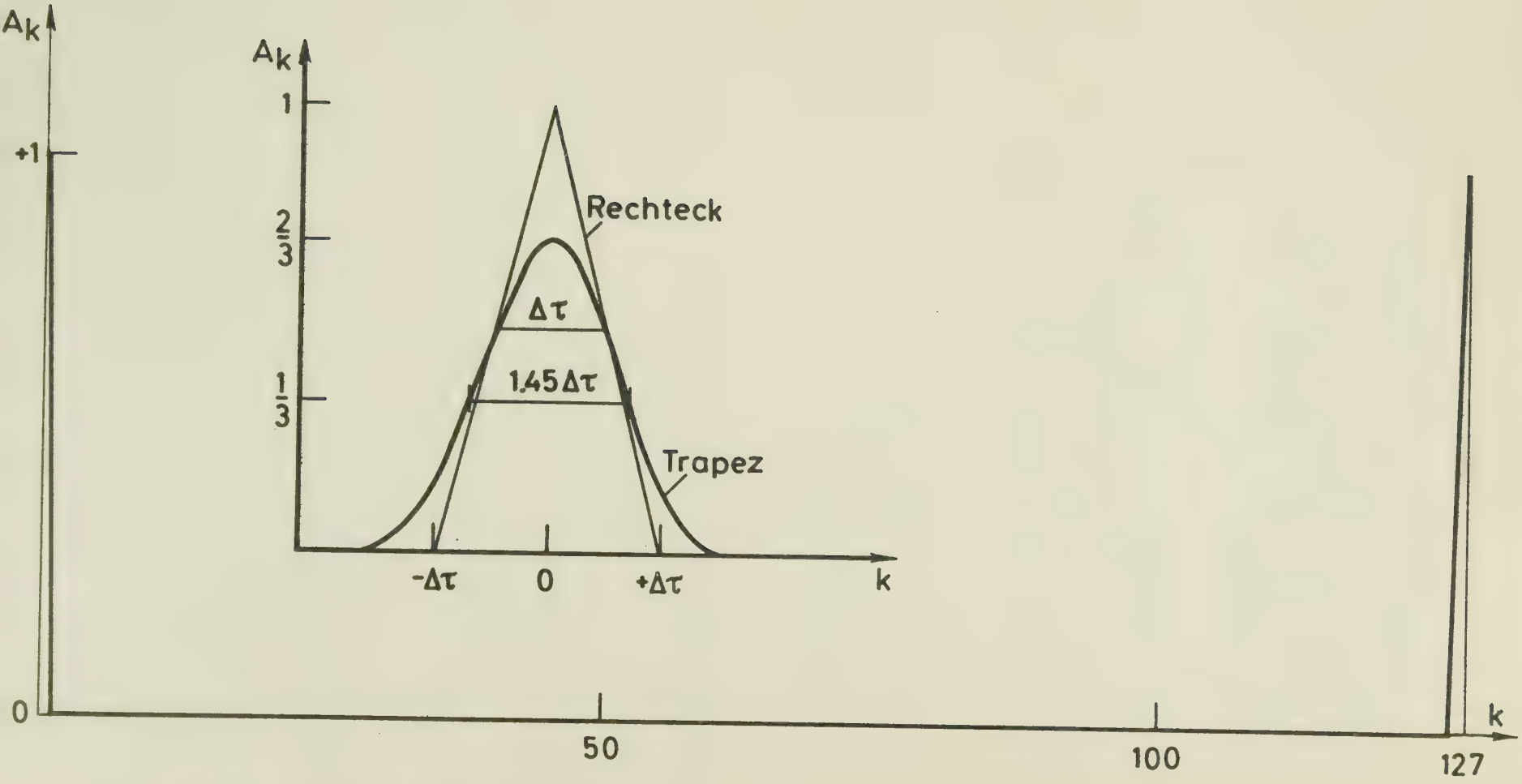


Abb. 4 Autokorrelation der Rechteckfolge und Vergleich mit der Autokorrelation einer Trapezfolge (Ausschnitt)

In Abb. 4 ist die Autokorrelationsfunktion $A_k = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} S_i S_{i+k}$ der verwendeten Rechteckfolge mit N = 127 dargestellt. Im Experiment wurde ein Einheitsschlitz des Choppers auf 4 Kanäle des Flugzeitanalysators aufgeteilt. Wegen der endlichen Breite des Neutronenstrahls ist die rechteckige durch eine trapezförmige Signalfunktion zu ersetzen. Die Halbwertsbreite der Autokorrelationsfunktion dieser Folge beträgt $\tau_{\frac{1}{2}} = 1.45 \cdot \Delta\tau$. Der Ausschnitt in Abb. 4 zeigt die Peaks der Autokorrelationen beider Signalfunktionen. Die Autokorrelation einer echt statistischen Folge ($N \to \infty$) wäre eine δ-Funktion. Eine willkürlich gewählte Zufallsfolge, die nicht zu den pseudostatistischen Folgen gehört, würde außer dem Hauptpeak noch "Geisterpeaks" im Bereich $k \neq 0$ zeigen.

Die Auflösungsfunktion war beim Experiment im wesentlichen durch die Unsicherheit des Startzeitpunktes der Neutronen am Chopper bestimmt. Deshalb stellt die Autokorrelationsfunktion der Trapezfolge in guter Näherung die Auflösungsfunktion der Apparatur dar.

Die Zählratenverteilung Z_i eines Meßbeispiels ist in Abb. 5 dargestellt. Abb. 6 zeigt die daraus durch Kreuzkorrelation errechnete Flugzeitverteilung F_k. Diese enthält außer den Phononenpeaks noch eine Neutronengruppe, die elastisch inkohärent gestreut wurde, und einen Peak, der durch elastisch inkohärente Streuung der Neutronen erzeugt wurde, die mit der Wellenlänge $\frac{1}{2}\lambda$ (II.Ordnung) vom Monochromatorkristall zur Probe reflektiert wurden. Durch nicht aufgelöste inelastische Prozesse wird dieser Peak verbreitert.

Die Abb. 7 gestattet es, den Meßzeitgewinn G der pseudostatistischen gegenüber der konventionellen Flugzeitmethode abzuschätzen. Dabei bedeuten

F_k - Inhalt des Kanals, der den interessierenden Peak enthält

$\bar{F}$ - mittlerer Kanalinhalt über das gesamte Spektrum

U - Untergrund

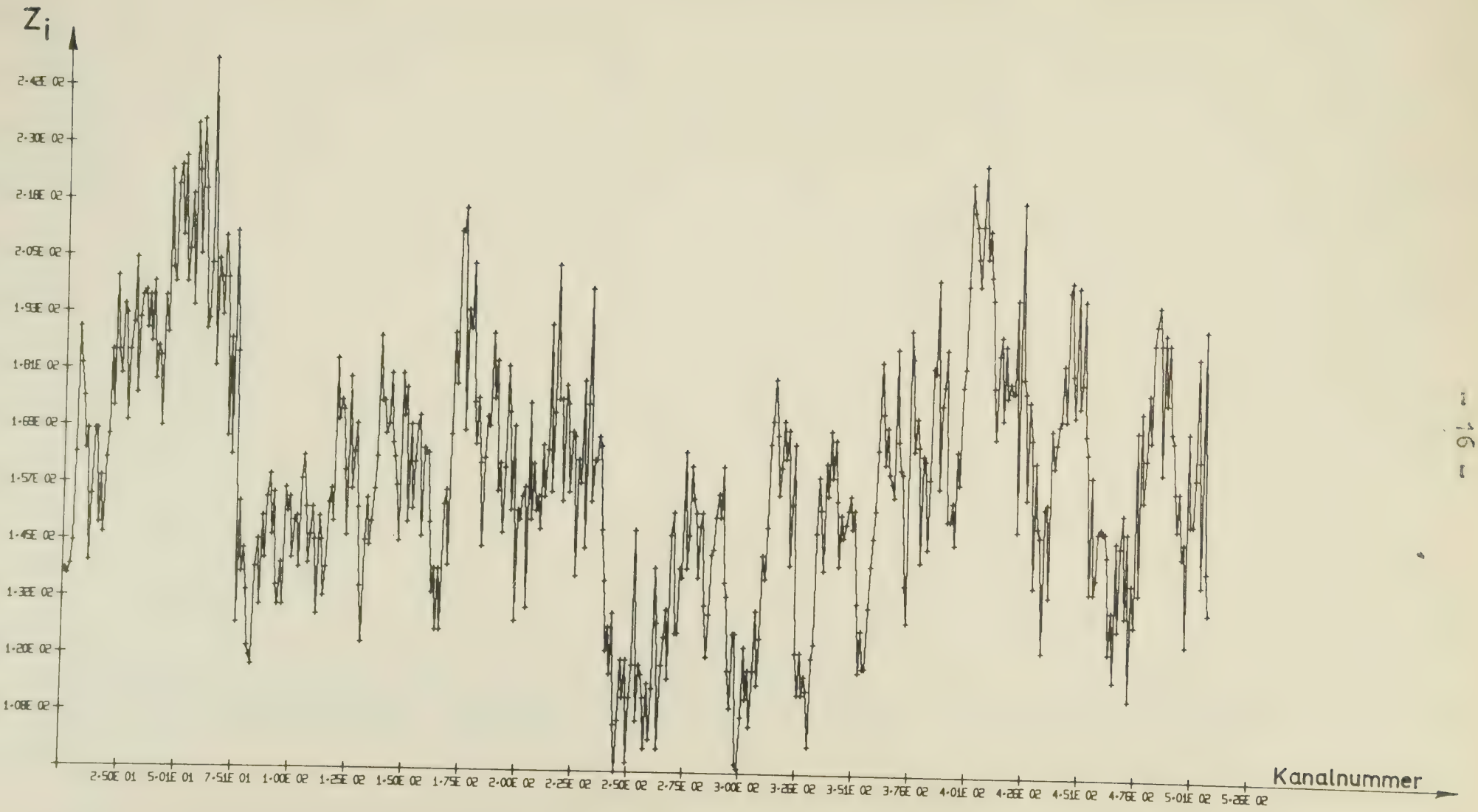


Abb. 5 Zählratenverteilung

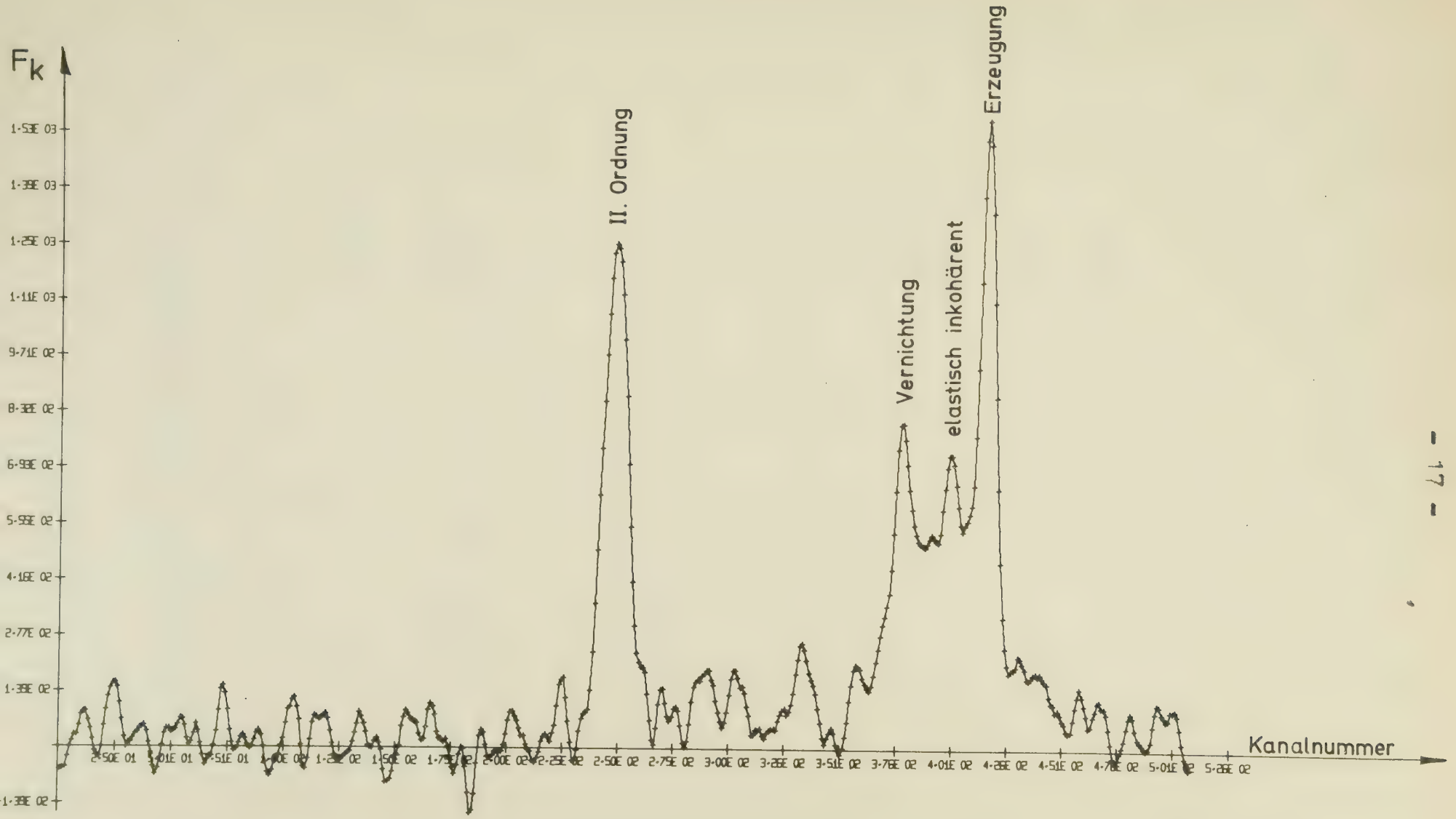


Abb. 6 Flugzeitverteilung

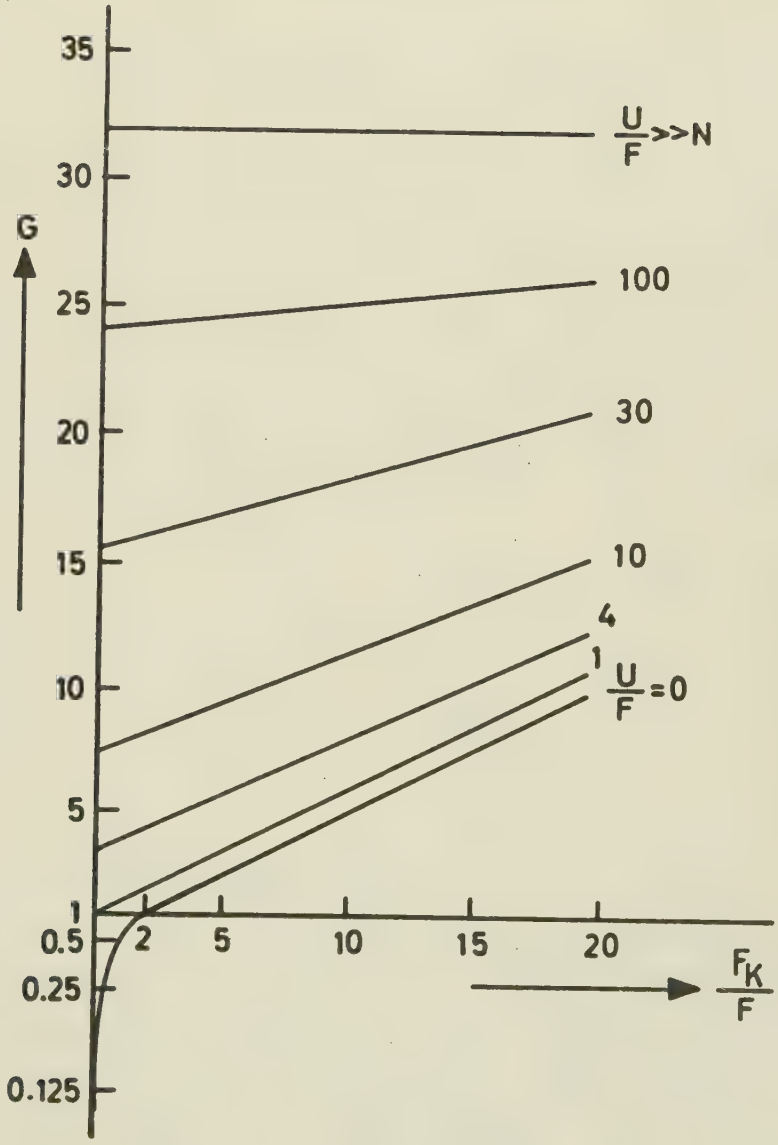


Abb. 7 Meßzeitgewinn G für N=127 (nach /9/)

Es zeigt sich, daß die pseudostatistische Methode für eine große Zahl von Problemen erhebliche Einsparung an Meßzeit gestattet. Nur in den Fällen $F_{k/F} < 2$ (kleiner Peak in einem sehr linienreichen Spektrum intensitätsstarker Peaks) und gleichzeitig $U/F < 1$ (geringer Untergrund) kann ein konventioneller Chopper günstiger sein /9/.

Die pseudostatistische Methode war für alle Messungen von Phononen an CsBr von Vorteil. Trotz des relativ hohen Absorptionsquerschnittes von Cs, der etwa 30 barn beträgt, spielte der Untergrund von Neutronen in der Reaktorhalle kaum eine Rolle. Durch massive Abschirmungen konnte er weitgehend beseitigt werden. Den Meßzeitgewinn bewirkte hauptsächlich das hohe Verhältnis von $F_{k/F}$ bei den stets linienarmen Phononenspektren, das bei akustischen Phononen mit hohem Wirkungsquerschnitt Werte von über 100 erreichte. Typische Beispiele für ein akustisches und ein optisches Phonon in CsBr sind:

	F_k	F	U	$F_{k/F}$	U/F	G
akustisch	1961	110	19	17,8	0.2	8
optisch	1314	111	52	11,8	0.5	6

2.25 Beschreibung der Meßapparatur

Die Experimente wurden am Reaktor FR2 des Kernforschungszentrums Karlsruhe durchgeführt. In Abb. 8 ist eine der verwendeten Meßanordnungen schematisch dargestellt, sie enthält zwei Phononenspektrometer. Der "weiße" Reaktorstrahl, der sich aus Neutronen aller Energien des Spektrums zusammensetzt, wurde durch den pseudostatistischen Chopper gepulst. Direkt hinter dem Chopper waren zwei Beryllium-Einkristalle so justiert, daß durch Bragg-Reflexion an den (0002)-Ebenen pseudostatistisch gechoppte monochromatische Neutronenstrahlen auf die beiden Streuproben fielen. Die einkristallinen Proben waren auf Goniometern

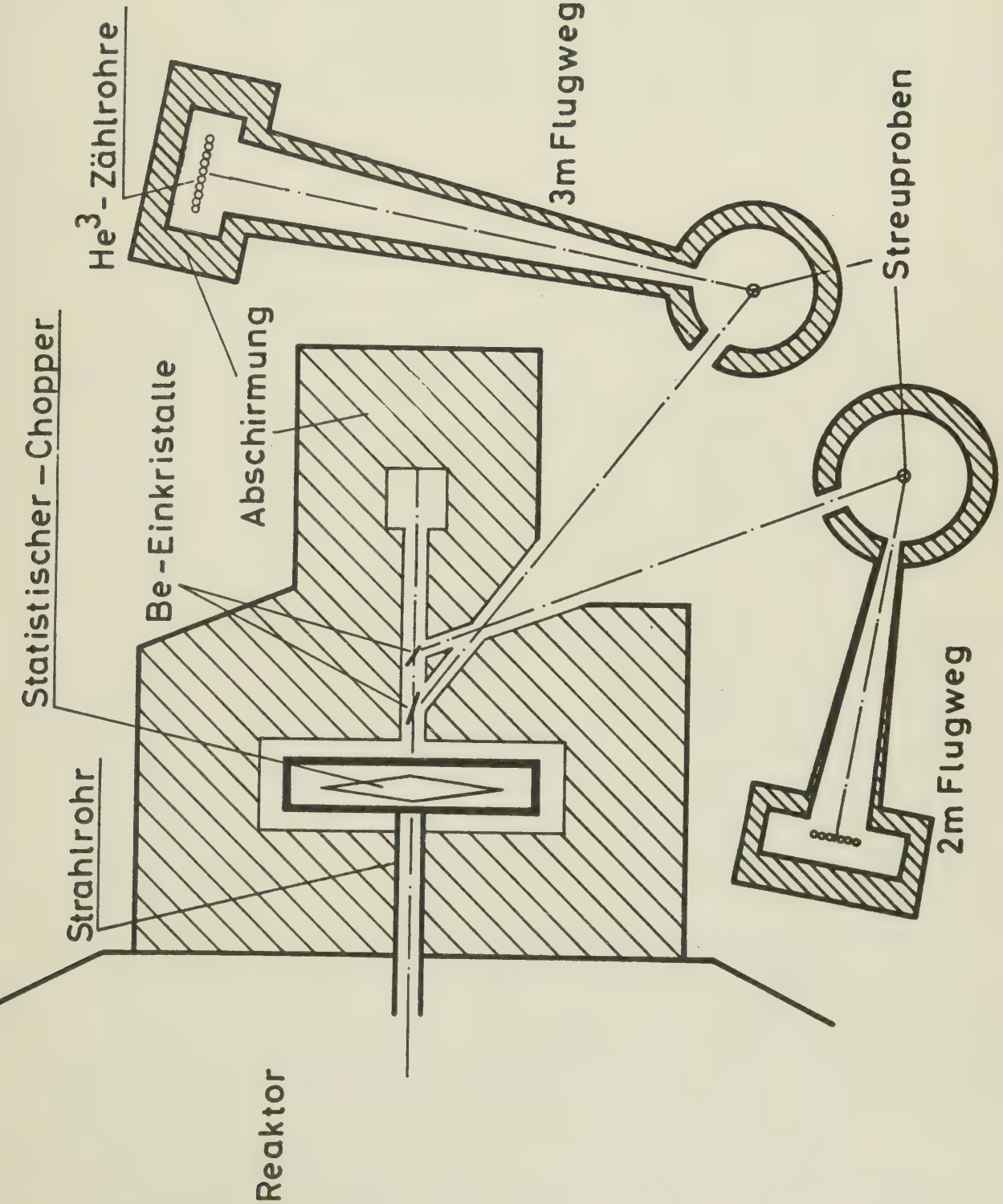


Abb. 8 Schema des experimentellen Aufbaus

so montiert, daß ihre Stellung gegenüber dem einfallenden Strahl verändert werden konnte. Bei dem Experiment a) wurden 3m von der Probe entfernt 10 ^{3}He-Zählrohre (4atm Fülldruck) nebeneinander benutzt, ihr Abstand entsprach 0.53°; bei dem Experiment b) waren es 6 ^{3}He-Zählrohre, bei einem Flugweg von 2m entsprach ihr Abstand 0.9°. Jedes Zählrohr war einzeln über Verstärker und eine Flugzeitkodiereinheit an das Computersystem MIDAS /10/ angeschlossen.

2.26 Auswertung der Meßdaten

Das Computersystem MIDAS summiert die eintreffenden Impulse entsprechend der Detektornummer und der Flugzeitkodierung zu Spektren auf. Von jedem Detektor erhält man eine Zählratenverteilung Z, die sich über 508 Kanäle erstreckt. Man kann die Messung unterbrechen und eine Kreuzkorrelation der Zwischenergebnisse durchführen, um die zur Beurteilung des Experimentes nötigen Flugzeitspektren zu erhalten. Nach Abschluß der Messung stehen die Daten auf Band gespeichert zur Verfügung.

Die Flugzeitspektren lassen erkennen, ob die der Einstellung zugrunde liegende Hypothese über den Verlauf der Dispersion $\omega(q,j)$ richtig war. Das ist der Fall, wenn im vorausberechneten Kanal des Spektrums der Schwerpunkt eines Phononenpeaks liegt. Häufig ist dieser in einen der Nachbarkanäle verschoben. Das bedeutet, daß außer der Energie des Phonons $\omega(q,j)$ auch der Wellenzahlvektor $\vec{q}$ zu korrigieren ist, da bei gleichem $\vec{k}_0$ der Vektor $\vec{k}$ nun eine andere Länge hat. War bei der Einstellung auf ein Phonon in einer bestimmten Richtung "gezielt" worden, so hat das gemessene Phonon im allgemeinen eine andere, der ersten ähnliche, Richtung. Durch die simultane Messung unter benachbarten Winkeln gelingt es meist, in einem der Detektoren ein Phonon in der gesuchten Richtung, allerdings mit etwas anderem Betrag von $\vec{q}$, zu messen.

Fast alle Flugzeitspektren der Messungen an CsBr enthielten nicht

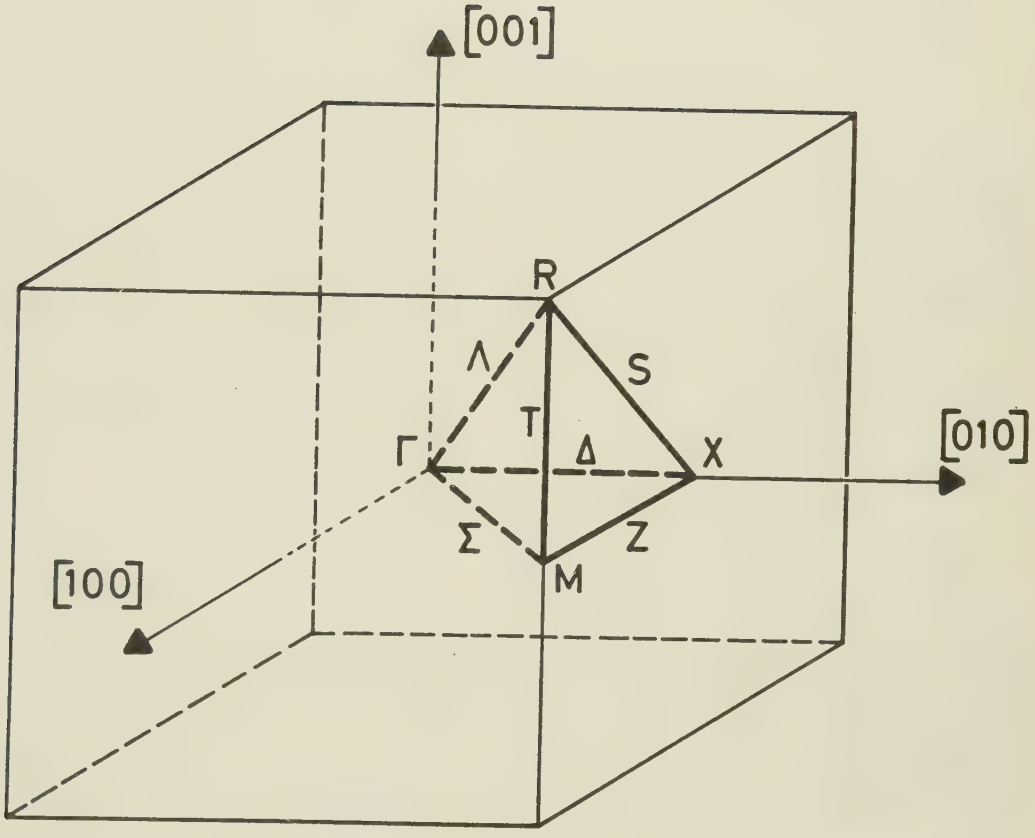


Abb. 9 Erste Brillouin Zone der CsCl Struktur

nur das Phonon, das mit der betreffenden Einstellung untersucht werden sollte, sondern außerdem ein zusätzliches Phonon, das in Phononenvernichtung gemessen war, häufig noch ein weiteres Phonon in Phononenerzeugung. Sofern die Peaks genügend gut aufgelöst waren, wurden auch alle diese Phononen ausgewertet. Aus der Peaklage wurde die Energie $\omega(q,j)$ und der Betrag von $\vec{k}$ ermittelt, Betrag und Richtung von $\vec{k}_0$ waren von der Einstellung her bekannt, ebenso der Winkel zwischen $\vec{k}_0$ und $\vec{k}$ und damit der Endpunkt des Vektors des Impulsübertrags $\vec{Q}$. Der Vektor von diesem Punkt zum nächsten Gitterpunkt ist der gesuchte Wellenzahlvektor $\vec{q}$, reduziert auf die erste Brillouin Zone. Die Wellenzahlvektoren der so bestimmten "zufälligen" Phononen wiesen in alle möglichen Richtungen in der Streuebene, nur selten in eine der Hauptsymmetrierichtungen. Es war nicht in allen Fällen möglich, so erhaltene Phononen in eindeutiger Weise einem bestimmten Zweig der Dispersion zuzuordnen.

2.27 Ergebnisse

Für die Messungen wurden zwei zylinderförmige CsBr Einkristalle benutzt. Sie hatten einen Durchmesser von etwa 2 cm und waren 6 cm lang, ihre Mosaikbreite betrug 20'. Ein Kristall war mit einer $[001]$-Richtung parallel zur Zylinderachse orientiert, der andere mit einer $[1\bar{1}0]$-Richtung.

CsBr kristallisiert in CsCl Struktur. Abb. 9 zeigt die Brillouin Zone mit Symmetrieachsen und Symmetriepunkten in der Bezeichnung von Warren /11/.

Es wurden Phononen in der (100)-Ebene und in der (110)-Ebene gemessen. Dabei waren die Einstellungen meist für Phononen in einer der Hauptsymmetrierichtungen berechnet. Durch die Wahl geeigneter Winkel (s.Abschnitt 2.1) war es infolge der Symmetrie des Kristalles möglich, bei solchen Phononen auf einen bestimmten Zweig zu zielen und zu erreichen, daß für Phononen benachbarter Zweige der Wirkungsquerschnitt sehr stark reduziert wurde. Das

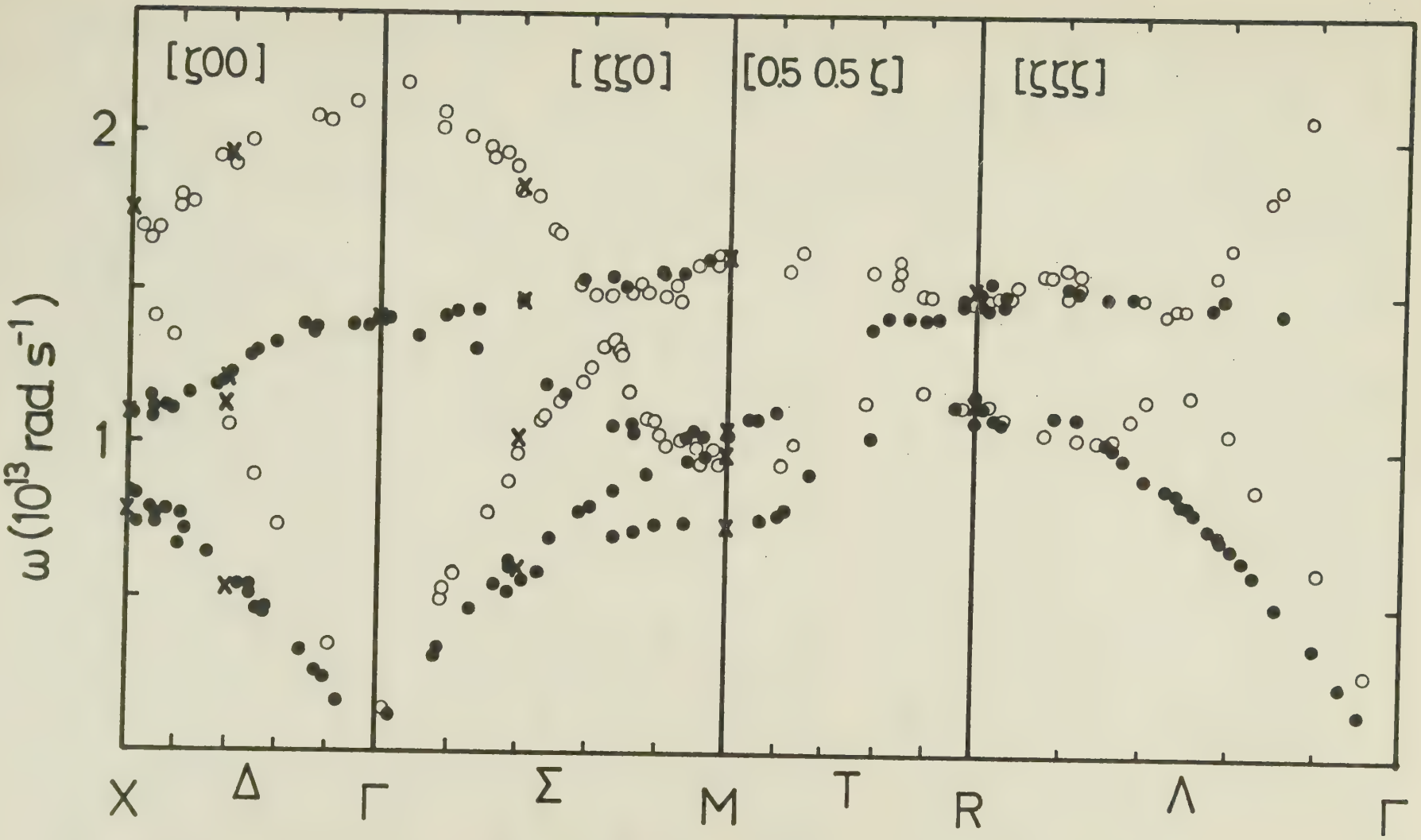


Abb. 10 Phononen in CsBr bei 300 °K
• transversal, ○ longitudinal polarisiert
× Messungen von Rolandson und Raunio /3/

erleichtert die Zuordnung und kann Fehlinterpretationen nicht genügend aufgelöster Peaks verhindern. Auch für die Phononen in unmittelbarer Nähe der Symmetrierichtungen, die in den benachbarten Detektoren gemessen wurden, konnte so die Zuordnung gefunden werden. Für zusätzlich gemessene "zufällige" Phononen (s.Abschnitt 2.26) war das nicht immer in eindeutiger Weise möglich. Oft war die Auflösung für Peaks, die in Phononenvernichtung gemessen wurden, nicht ausreichend um z.B. Doppelpeaks zu trennen. Solche Messungen wurden verworfen. Aber auch gut aufgelöste Phononen konnten in einigen Fällen nur durch Anschlußmessungen einem bestimmten Zweig der Dispersion zugeordnet werden, da oft die mit (2.4) berechneten inelastischen Strukturfaktoren für mehrere benachbarte Zweige die gleiche Größenordnung ergaben. Insgesamt wurden in den beiden Streuebenen über 800 Phononen ausgewertet.

Abb. 10 zeigt die Phononen in den drei Hauptsymmetrierichtungen ($\pm 2.5^0$) und in der Richtung T. Die Streuung der Meßwerte entspricht den abgeschätzten Fehlern, von denen einige in Tabelle I angegeben sind. Im Gegensatz zu den meisten Experimenten, die an Dreiachsspektrometern ausgeführt wurden, sind bei diesem Experiment benachbarte Phononen auf einer Dispersionskurve meist an verschiedenen Punkten im reziproken Gitter gemessen worden, oft außerdem bei verschiedenen Einfallsenergien. Da einige Phononen auch noch mit verschiedenen CsBr Kristallen bestimmt wurden, sollten systematische Fehler vernachlässigbar sein.

Betrachtet man die Dispersion $\omega(q,j)$ nicht nur in einzelnen Richtungen von $\vec{q}$, sondern läßt zu, daß $\vec{q}$ Werte in einer ganzen Ebene annimmt, so kann man $\omega(\vec{q},j)$ für CsBr durch 6 verschiedene "Dispersionsflächen" über jeder solchen Ebene darstellen. Beispiele dafür sind in Abb. 11 und Abb. 12 gezeigt. Es handelt sich um Werte, die dem oberen transversal akustischen Zweig und dem longitudinal optischen Zweig zugeordnet wurden und deren Wellenzahlvektoren $\vec{q}$ in der (100)-Ebene liegen. Die entsprechenden Dispersionsflächen wurden mit dem in Abschnitt 3.24 beschriebenen Breathing Shell Model berechnet, die Differenzen zwischen den

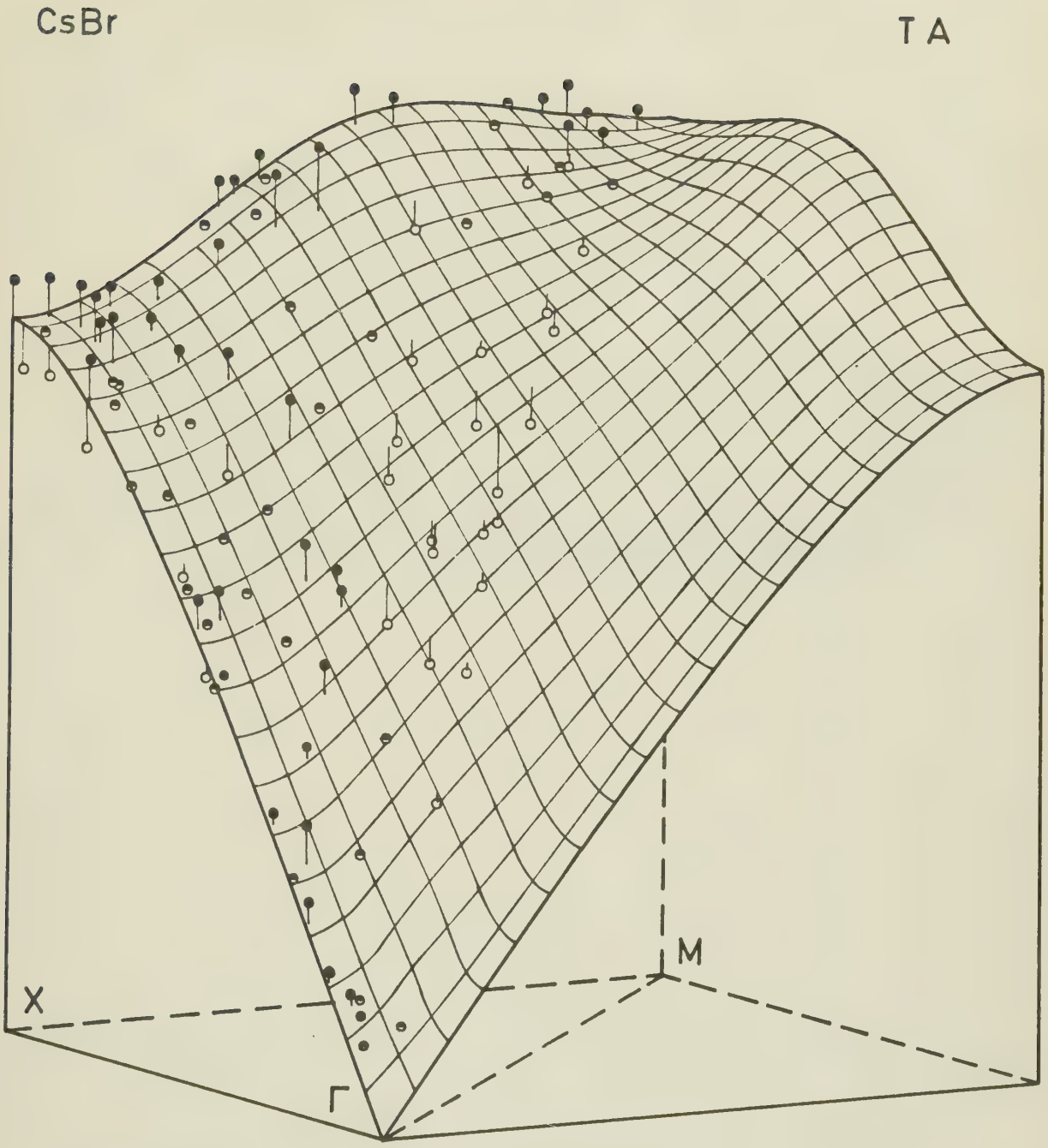


Abb. 11 Dispersionsfläche des oberen transversal akustischen Zweiges
ϙ Messwert über der Fläche
ϙ Messwert unter der Fläche
Die Länge der Striche kennzeichnet die Größe der Differenz

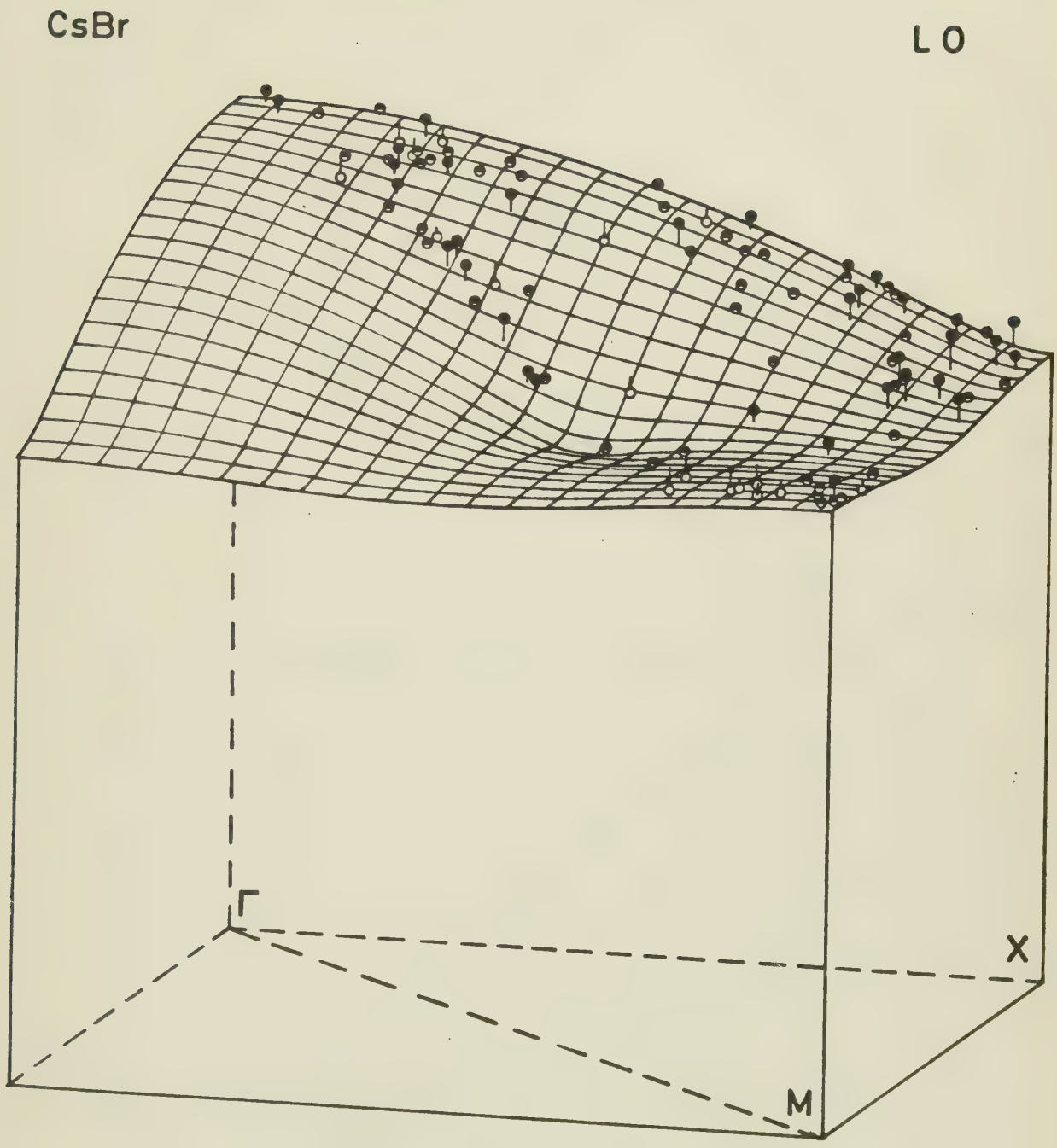


Abb. 12 Dispersionsfläche des longitudinal optischen Zweiges (s. Abb.11)

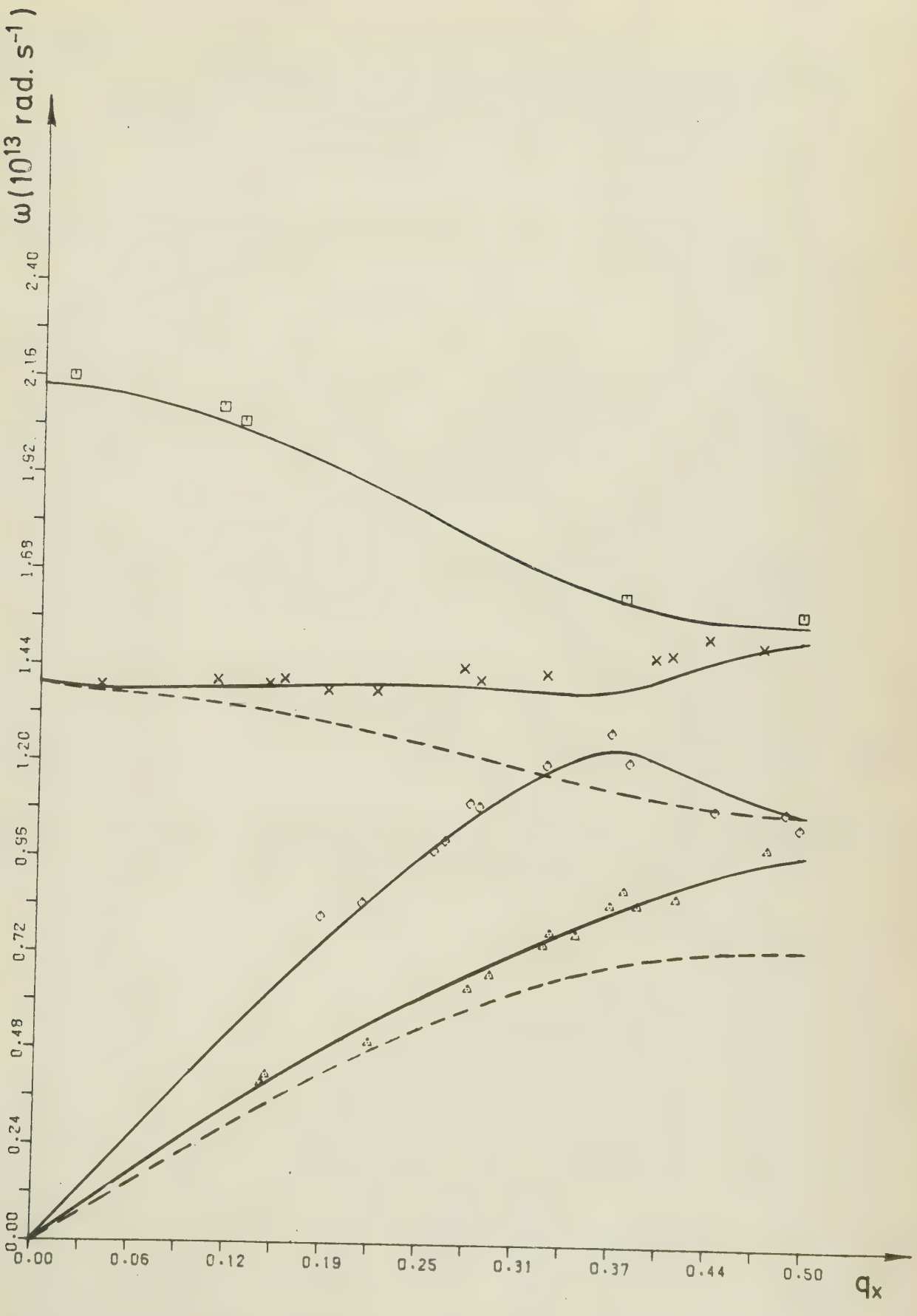


Abb. 13 Dispersionskurven für CsBr
q 30° (±2.5°) gegen Δ in der (100) - Ebene

berechneten Frequenzen $\omega(q,j)$ und den bei den gleichen Werten von $\vec{q}$ gemessenen Phononenfrequenzen sind eingezeichnet. Meßwerte wurden nur im irreduziblen Teil der Brillouin Zone eingetragen.

Bei der Auswertung der Meßergebnisse und zum Vergleich mit verschiedenen Modellrechnungen wurde vorwiegend eine andere Art der Darstellung benutzt, bei der alle Phononen, deren Wellenzahlvektoren in der Streuebene mit einer vorgegebenen Richtung (z.B. [100]) einen bestimmten Winkel $\gamma \pm 2.5^0$ bildeten, von einer Rechenanlage aussortiert und zusammen mit den Ergebnissen der Modellrechnung für γ auf einem Plotter gezeichnet wurden. So konnten in mehreren Darstellungen mit verschiedenen Werten für γ und für beide Streuebenen alle Meßpunkte in Dispersionskurven eingetragen werden, die sofort erlaubten, Abweichungen auch außerhalb der Hauptsymmetrierichtungen zu erkennen. Beispiele solcher Dispersionskurven werden in Abb. 13 gezeigt. Da in der Richtung 30^0 gegen Δ nur Messungen mit der (100)-Ebene als Streuebene vorgenommen wurden, konnten hier keine Phononen gemessen werden, deren Polarisationsvektor senkrecht zur (100)-Ebene gerichtet ist. Die betreffenden Zweige sind gekennzeichnet (----).

Der Anhang enthält in Tabelle V eine Liste aller ausgewerteten Phononen außerhalb der Hauptsymmetrierichtungen in CsBr.

Tabelle I

Phononenfrequenzen in den Hauptsymmetrierichtungen (±2.5°)

CsBr bei 300°K

($\zeta = a_o q/2$; Frequenzen in 10^{13} rad/sec)

[ζ 0 0] - Richtung (Δ)

ζ_x	ζ_y	ζ_z	ω	ζ_x	ζ_y	ζ_z	ω
Longitudinal optisch (LO)				Longitudinal akustisch (LA)			
0.05	0.00	0.0	2.10±0.07	0.11	0.00	0.0	0.35±0.02
0.10	0.00	0.0	2.04	0.20	0.0	0.0	0.73
0.13	0.0	0.0	2.05	0.25	0.0	0.0	0.89
0.26	0.00	0.0	1.98	0.30	0.00	0.0	1.05
0.29	0.00	0.0	1.89	0.34	0.0	0.0	1.17
0.32	0.01	0.0	1.91	0.41	0.00	0.0	1.34
0.37	0.0	0.0	1.77	0.45	0.01	0.0	1.40±0.04
0.40	0.01	0.0	1.79				
0.40	0.00	0.0	1.75				
0.44	0.00	0.0	1.68				
0.46	0.0	0.0	1.65				
0.48	0.00	0.0	1.69±0.05				
Transversal optisch (TO)				Transversal akustisch (TA)			
0.02	0.0	0.0	1.38±0.04	0.08	0.00	0.0	0.17±0.01
0.05	0.0	0.0	1.37	0.08	0.00	0.0	0.17
0.12	0.00	0.0	1.37	0.10	0.00	0.0	0.23
0.12	0.00	0.0	1.37	0.12	0.0	0.0	0.26
0.13	0.00	0.0	1.37	0.15	0.00	0.0	0.32
0.13	0.0	0.0	1.36	0.22	0.00	0.0	0.46
0.15	0.00	0.0	1.38	0.23	0.0	0.0	0.44
0.21	0.00	0.0	1.32	0.24	0.0	0.0	0.45
0.25	0.0	0.0	1.29	0.25	0.01	0.0	0.50
0.26	0.00	0.0	1.27	0.26	0.00	0.0	0.53
0.29	0.01	0.0	1.22	0.28	0.01	0.0	0.54
0.01	0.01	0.31	1.19	0.34	0.00	0.0	0.63
0.33	0.00	0.0	1.19	0.39	0.01	0.0	0.71
0.33	0.00	0.0	1.17	0.40	0.0	0.0	0.76
0.01	0.01	0.35	1.19	0.40	0.0	0.0	0.66
0.38	0.00	0.0	1.15	0.01	0.01	0.42	0.77
0.42	0.01	0.0	1.10	0.01	0.01	0.44	0.76
0.43	0.01	0.0	1.11	0.45	0.0	0.0	0.73
0.45	0.01	0.0	1.11	0.46	0.0	0.0	0.78
0.45	0.01	0.0	1.08	0.48	0.0	0.0	0.73
0.46	0.01	0.0	1.14	0.49	0.02	0.0	0.82
0.49	0.01	0.0	1.09±0.03	0.50	0.0	0.0	0.82±0.05

Tabelle I (Fortsetzung)

[ζ ζ 0] - Richtung (Σ)

LO				LA			
0.03	0.03	0.0	2.16±0.07	0.03	0.03	0.0	0.13
0.08	0.08	0.0	2.01	0.10	0.10	0.0	0.49±0.03
0.09	0.08	0.0	2.06	0.11	0.11	0.0	0.52
0.13	0.13	0.0	1.98	0.12	0.12	0.00	0.57
0.15	0.15	0.0	1.95	0.17	0.17	0.0	0.77
0.16	0.15	0.0	1.92	0.20	0.20	0.0	0.87
0.18	0.18	0.0	1.93	0.21	0.20	0.0	0.97
0.19	0.18	0.0	1.89	0.24	0.24	0.00	1.08
0.20	0.19	0.0	1.81	0.25	0.24	0.0	1.09
0.22	0.22	0.0	1.79	0.27	0.27	0.0	1.14
0.24	0.24	0.0	1.69	0.30	0.30	0.0	1.20
0.25	0.25	0.00	1.67	0.32	0.30	0.0	1.25
0.28	0.28	0.0	1.52	0.33	0.33	0.0	1.32
0.30	0.30	0.0	1.48	0.35	0.35	0.0	1.34
0.33	0.31	0.0	1.48	0.35	0.35	0.0	1.30
0.36	0.34	0.0	1.49	0.36	0.36	0.00	1.29
0.37	0.37	0.0	1.52	0.37	0.36	0.0	1.17
0.38	0.35	0.0	1.49	0.40	0.40	0.01	1.09
0.41	0.38	0.0	1.48	0.41	0.41	0.00	1.08
0.42	0.42	0.0	1.51	0.41	0.41	0.0	1.03
0.43	0.43	0.0	1.46	0.43	0.43	0.0	1.00
0.45	0.44	0.0	1.58	0.44	0.43	0.0	1.02
0.48	0.46	0.0	1.61	0.47	0.47	0.0	0.99
0.48	0.46	0.0	1.59	0.47	0.43	0.0	0.94
0.50	0.50	0.0	1.60±0.05	0.49	0.48	0.0	0.98
				0.49	0.46	0.0	0.95
TO_1				0.50	0.50	0.0	0.94±0.04
0.01	0.01	0.0	1.40 .04				
0.02	0.02	0.0	1.40	TA_1			
0.11	0.10	0.0	1.42	0.03	0.03	0.0	0.11
0.11	0.11	0.0	1.41	0.10	0.10	0.0	0.33±0.02
0.15	0.14	0.0	1.43	0.15	0.14	0.0	0.46
0.22	0.22	0.0	1.46	0.18	0.17	0.0	0.54
0.30	0.28	0.0	1.53	0.20	0.20	0.0	0.61
0.34	0.32	0.0	1.55	0.20	0.19	0.0	0.59
0.36	0.36	0.0	1.51	0.26	0.26	0.0	0.69
0.42	0.40	0.0	1.56	0.30	0.30	0.0	0.78
0.43	0.41	0.0	1.55	0.32	0.30	0.0	0.79
0.44	0.44	0.0	1.56	0.35	0.35	0.0	0.85
0.48	0.46	0.0	1.60	0.40	0.40	0.0	0.90
0.48	0.46	0.0	1.59	0.45	0.42	0.0	0.95
0.49	0.46	0.0	1.60±0.05	0.48	0.46	0.0	0.96±0.04
TO_2				TA_2			
0.07	0.07	0.0	1.35±0.04	0.09	0.09	0.0	0.31±0.02
0.15	0.15	0.00	1.30	0.20	0.20	0.0	0.52
0.25	0.25	0.0	1.19	0.22	0.22	0.0	0.55
0.28	0.28	0.01	1.16	0.24	0.24	0.0	0.58
0.35	0.35	0.00	1.06	0.35	0.35	0.0	0.70
0.37	0.37	0.00	1.07	0.38	0.38	0.00	0.72
0.38	0.38	0.0	1.04	0.41	0.41	0.0	0.74
0.45	0.45	0.0	1.03	0.45	0.45	0.0	0.75
0.46	0.46	0.01	1.05	0.49	0.49	0.0	0.74±0.03
0.48	0.48	0.00	1.03				

Tabelle I (Fortsetzung)

[ζ ζ ζ] - Richtung (Λ)

LO				LA			
0.11	0.11	0.11	2.06±0.07	0.04	0.04	0.04	0.27±0.02
0.14	0.14	0.14	1.84	0.10	0.10	0.10	0.60
0.15	0.15	0.15	1.81	0.17	0.17	0.17	0.86
0.20	0.20	0.20	1.65	0.20	0.20	0.20	1.04
0.22	0.22	0.20	1.56	0.25	0.25	0.25	1.17
0.25	0.25	0.25	1.45	0.30	0.30	0.29	1.15
0.26	0.26	0.26	1.45	0.32	0.32	0.31	1.09
0.27	0.27	0.27	1.43	0.34	0.34	0.34	1.02
0.29	0.29	0.30	1.48	0.35	0.35	0.35	1.01
0.38	0.38	0.36	1.51	0.38	0.38	0.38	1.02
0.38	0.38	0.38	1.56	0.42	0.42	0.42	1.03
0.39	0.39	0.39	1.57	0.46	0.46	0.46	1.08
0.39	0.39	0.39	1.48	0.48	0.48	0.48	1.12±0.04
0.41	0.41	0.41	1.55				
0.42	0.42	0.42	1.55	TA			
0.45	0.45	0.44	1.51				
0.44	0.44	0.46	1.48				
0.47	0.47	0.43	1.48	0.05	0.05	0.05	0.14±0.01
0.47	0.47	0.48	1.47	0.07	0.07	0.07	0.22
0.49	0.49	0.49	1.48±0.05	0.10	0.10	0.10	0.35
				0.15	0.15	0.14	0.48
				0.17	0.17	0.17	0.59
				0.18	0.18	0.17	0.63
				0.20	0.20	0.19	0.67
				0.21	0.21	0.21	0.70
				0.21	0.21	0.21	0.71
TO				0.22	0.22	0.22	0.74
				0.24	0.24	0.24	0.78
				0.25	0.25	0.24	0.80
0.13	0.13	0.14	1.44±0.04	0.25	0.25	0.26	0.81
0.21	0.21	0.20	1.48	0.26	0.26	0.25	0.84
0.22	0.22	0.22	1.45	0.27	0.27	0.26	0.86
0.31	0.31	0.31	1.48	0.30	0.30	0.28	0.89
0.32	0.32	0.34	1.48	0.32	0.32	0.32	0.96
0.36	0.36	0.38	1.50	0.34	0.34	0.33	0.99
0.38	0.38	0.39	1.51	0.34	0.34	0.32	1.01
0.45	0.45	0.46	1.45	0.38	0.38	0.37	1.09
0.43	0.43	0.46	1.48	0.41	0.41	0.38	1.09
0.48	0.48	0.48	1.52	0.46	0.46	0.47	1.07
0.46	0.46	0.48	1.44	0.48	0.48	0.48	1.08
0.47	0.47	0.49	1.47	0.49	0.49	0.49	1.12
0.48	0.48	0.49	1.45	0.50	0.50	0.49	1.07
0.49	0.49	0.49	1.48±0.05	0.50	0.50	0.50	1.16±0.05

3. Diskussion der Ergebnisse

3.1 Vergleich mit anderen Messungen

3.11 Neutronenstreuung

Ergebnisse einer gleichzeitigen und unabhängigen Untersuchung der Phononendispersion in CsBr durch unelastische Neutronenstreuung wurden von Rolandson und Raunio veröffentlicht /3/. Zum direkten Vergleich stehen nur 18 Meßpunkte bei 300°K zur Verfügung, da bei fast allen Messungen dieser Gruppe die Probentemperatur 80°K betrug. Es wurden ausschließlich Phononen in den drei Hauptsymmetrierichtungen und der T-Richtung bestimmt. Alle Werte bei 300°K sind in Abb. 10 eingetragen. Die Auflösung des verwendeten Dreiachsenspektrometers mit Doppelmonochromator ist sehr gut, die Fehler in ω betragen $0.03 \cdot 10^{13}$ rad sec^{-1} oder weniger. Beide Messungen stimmen gut überein, besonders für die wichtigen Zonenrand-Phononen ergeben sich innerhalb der Fehlergrenzen gleiche Werte. Die stärkste Diskrepanz tritt bei den longitudinal akustischen Zweigen auf, wegen der Steilheit dieser Zweige kann sie schon durch einen kleinen Fehler in q hervorgerufen werden.

3.12 Optische Messungen

Ein direkter Vergleich mit Ergebnissen optischer Messungen kann nur für Phononen mit $q = 0$, also am Γ-Punkt durchgeführt werden. Die Reststrahlenfrequenz ω_{TO} wurde von Lowndes zu $1.39 \cdot 10^{13}$ rad sec^{-1} bestimmt /12/. Durch Messung der Reflexion an dünnen Filmen konnte er auch die Frequenz des longitudinal optischen Zweiges für den Grenzfall langer Wellen $(q \to 0)\,\omega_{LO} = 2.13 \cdot 10^{13}$ rad sec^{-1} ermitteln /13/. Beide Ergebnisse stimmen mit den Neutronendaten gut überein. Wie Lowndes zeigte, ist für diese Werte die Lyddane-Sachs-Teller Beziehung

$$\left[\frac{\varepsilon_0}{\varepsilon_\infty}\right]^{\frac{1}{2}} = \left[\frac{\omega_{LO}}{\omega_{TO}}\right]_{\vec{q} \to 0}$$

erfüllt.

Einphononen-Raman Spektren von CsBr sind wegen der Inversionssymmetrie des CsCl-Gitters nicht meßbar. Ein indirekter Vergleich ist jedoch mit Zweiphononen-Raman Spektren möglich. Wenn der Streuquerschnitt unabhängig von der speziellen Kombination der beteiligten Phononen wäre, so würden diese Spektren direkt die Zweiphononen-Zustandsdichte $\rho(\omega_1 \pm \omega_2)$ wiedergeben. Sie ist ein Maß für die Zahl von Phononenpaaren, deren Frequenzkombination $\omega_1 \pm \omega_2$ im Bereich zwischen ω und $\omega + d\omega$ liegt. Zu den Phononen ω_1 und ω_2 gehören gleich große aber entgegengesetzt gerichtete Wellenzahlvektoren $\vec{q}$. Tatsächlich hängt der Streuquerschnitt von den Polarisationen sowohl der einfallenden und gestreuten Photonen, als auch der beiden im Streuprozeß erzeugten Phononen ab.

Der hier durchgeführte Vergleich soll sich auf kritische Punkte in $\rho(\omega_1 \pm \omega_2)$ beschränken, also auf die Fälle, in denen $\mathrm{grad}_q(\omega_1 \pm \omega_2)$ verschwindet. Die Zahl dieser Punkte ist groß, es zeigt sich aber, daß schon eine Auswahl weniger kritischer Punkte, die zu Kombinationen an Symmetriepunkten des Gitters gehören, eine Prüfung der Übereinstimmung gestattet.

Zweiphononen-Raman Spektren wurden an CsBr von Narayanan /14/ und Stekhanov und KorolKov /15/ gemessen. Das Spektrum der ersten Messung enthält 5 Peaks, das zweite Spektrum 9 Peaks. Tabelle II zeigt, daß schon Kombinationen der interpolierten Frequenzen der Neutronenmessungen an den Symmetriepunkten Γ, X und M, die mit besonderer Sorgfalt vorgenommen worden waren, ausreichen, um alle wichtigen Peaks der Raman Spektren zu deuten. Die vier Peaks mit den niedrigsten Frequenzen im Spektrum von Stekhanov und KoroÏkov wurden von Narayanan nicht beobachtet. Da sie zu Differenzprozessen gehören, sind sie schon gegen geringe Abweichungen in ω_1 oder ω_2 extrem empfindlich.

Tabelle II

Zweiphononen Raman Spektren von CsBr

(Frequenzen in cm^{-1})

Raman Experimente		Neutronenmessung	Zuordnung
Narayanan	Stekhanov Korolkov		
190		188	LO(Γ) + TO(Γ)
	176	175	2 LO(X)
	163	165	LO(X) + LA(X)
155		155	2 LA(X)
135	134	135	LO(M) + LA(M)
		135	TO(X) + LA(X)
	125	124	LO(M) + TA_2(M)
107		109	2 TO_2(M)
	105	105	TO_2(M) + LA(M)
79		79	2 TA_2(M)
	75	-	-
	54	-	-
	40	40	LO(Γ) - TO(Γ)
	25	-	-

3.2 Vergleich mit verschiedenen Modellrechnungen

3.21 Gitterdynamik

Das Gitterpotential Φ wird von den Koordinaten der Teilchen des Gitters bestimmt. Die Position des Atoms k in der Zelle ℓ sei

$$\vec{x}\binom{\ell}{k} = \vec{x}(\ell) + \vec{x}(k) \ .$$

Die Komponenten in einem kartesischen Koordinatensystem sollen durch α, β, γ bezeichnet werden. In harmonischer Näherung ist die Änderung der potentiellen Energie bei kleinen Auslenkungen $\vec{u}(\begin{smallmatrix}\ell\\k\end{smallmatrix})$ der Atome gegeben durch

$$\Phi_2 = \frac{1}{2} \sum_{\substack{\ell\ell'\\kk'\\\alpha\beta}} \Phi_{\alpha\beta}(\begin{smallmatrix}\ell\ell'\\kk'\end{smallmatrix}) \; u_\alpha(\begin{smallmatrix}\ell\\k\end{smallmatrix}) \; u_\beta(\begin{smallmatrix}\ell'\\k'\end{smallmatrix}) \quad .$$

Der Hamiltonoperator für das gesamte System lautet dann

$$H = \frac{1}{2} \sum_{\substack{\ell\ell'\\kk'\\\alpha\beta}} \left(m_k \; \dot{u}_\alpha^2(\begin{smallmatrix}\ell\\k\end{smallmatrix}) + \Phi_{\alpha\beta}(\begin{smallmatrix}\ell\ell'\\kk'\end{smallmatrix}) \; u_\alpha(\begin{smallmatrix}\ell\\k\end{smallmatrix}) \; u_\beta(\begin{smallmatrix}\ell'\\k'\end{smallmatrix}) \right)$$

und die Bewegungsgleichung eines einzelnen Atoms

$$m_k \; \ddot{u}_\alpha(\begin{smallmatrix}\ell\\k\end{smallmatrix}) = - \sum_{\ell' k' \beta} \Phi_{\alpha\beta}(\begin{smallmatrix}\ell\ell'\\kk'\end{smallmatrix}) \; u_\beta(\begin{smallmatrix}\ell'\\k'\end{smallmatrix}) \quad .$$

Der Ansatz ebener Wellen

$$u_\alpha(\begin{smallmatrix}\ell\\k\end{smallmatrix}) = \frac{u_\alpha(k|\vec{q})}{\sqrt{m_k}} \; e^{i(\vec{q}\vec{X}(\begin{smallmatrix}\ell\\k\end{smallmatrix}) - \omega(\vec{q})t)}$$

führt auf die dynamische Gleichung

$$\omega^2(\vec{q}) \; u_\alpha(k|\vec{q}) = \sum_{k'\beta} D_{\alpha\beta}(\begin{smallmatrix}q\\kk'\end{smallmatrix}) \; u_\beta(k'|\vec{q}) \quad .$$

$$D_{\alpha\beta}(\begin{smallmatrix}\vec{q}\\kk'\end{smallmatrix}) = \frac{1}{\sqrt{m_k \; m_{k'}}} \sum_{\ell'} \Phi_{\alpha\beta}(\begin{smallmatrix}\ell\ell'\\kk'\end{smallmatrix}) \; e^{i\vec{q}\left[\vec{X}(\begin{smallmatrix}\ell'\\k'\end{smallmatrix}) - \vec{X}(\begin{smallmatrix}\ell\\k\end{smallmatrix})\right]}$$

wird als dynamische Matrix bezeichnet. Die Eigenwerte der dynamischen Gleichung liefern die Dispersionsbeziehung $\omega^2(\vec{q})$ /16/.

Die Zahl der Kraftkonstanten - $\Phi_{\alpha\beta}\binom{ll'}{kk'}$ läßt sich stark verringern, wenn man die Kristallsymmetrie ausnutzt. Stehen genügend unabhängige Daten zur Verfügung, um die verbleibenden Kraftkonstanten zu bestimmen, so ist mit der Kenntnis aller Kraftkonstanten die Dispersionsbeziehung ermittelt.

Ziel einer Modelltheorie ist es, auch mit einer geringen Zahl von Daten die Dispersion zu berechnen. Dazu wird ein Modellpotential entwickelt, aus dem die Bewegungsgleichungen für die Modellteilchen berechnet werden. Diese enthalten die Modellparameter, deren Zahl möglichst klein gehalten wird. Identifiziert man die Bewegung der Modellteilchen mit denen der Teilchen im Gitter, so hat man die Möglichkeit, die Anpassung an experimentelle Daten über die Modellparameter vorzunehmen, statt über die Kraftkonstanten. Im folgenden werden einige wichtige Modelle kurz beschrieben und die berechneten Dispersionskurven mit den Ergebnissen der Neutronenstreuexperimente verglichen.

3.22 Modifiziertes Rigid Ion Model

Kellermann /17/ benutzte als erster das Modell starrer Ionen zur Berechnung der Dispersion in NaCl. Diesem einfachsten Modell liegt die Annahme kugelförmiger Ladungswolken zugrunde, in deren Mittelpunkt der Kern des Ions sitzt. Die Ladungswolken begleiten alle Auslenkungen des Kerns, sind also starr an ihn gekoppelt und nicht deformierbar. Es genügt, die Bewegungen der starren Ionen zu beschreiben. Die Ionenladung wurde zu +e bzw. -e (e - Ladung des Elektrons) angenommen.

Wie schon im Fall von NaCl ergeben sich auch für CsBr große Abweichungen der so berechneten Dispersionskurven /19/ von den Ergebnissen unelastischer Neutronenstreuexperimente. Sie sind besonders ausgeprägt für die longitudinalen Zweige. Die Tatsache, daß nach den Modellannahmen der Grenzwert der Dielektrizitätskonstante für hohe Frequenzen 1 sein sollte, während die

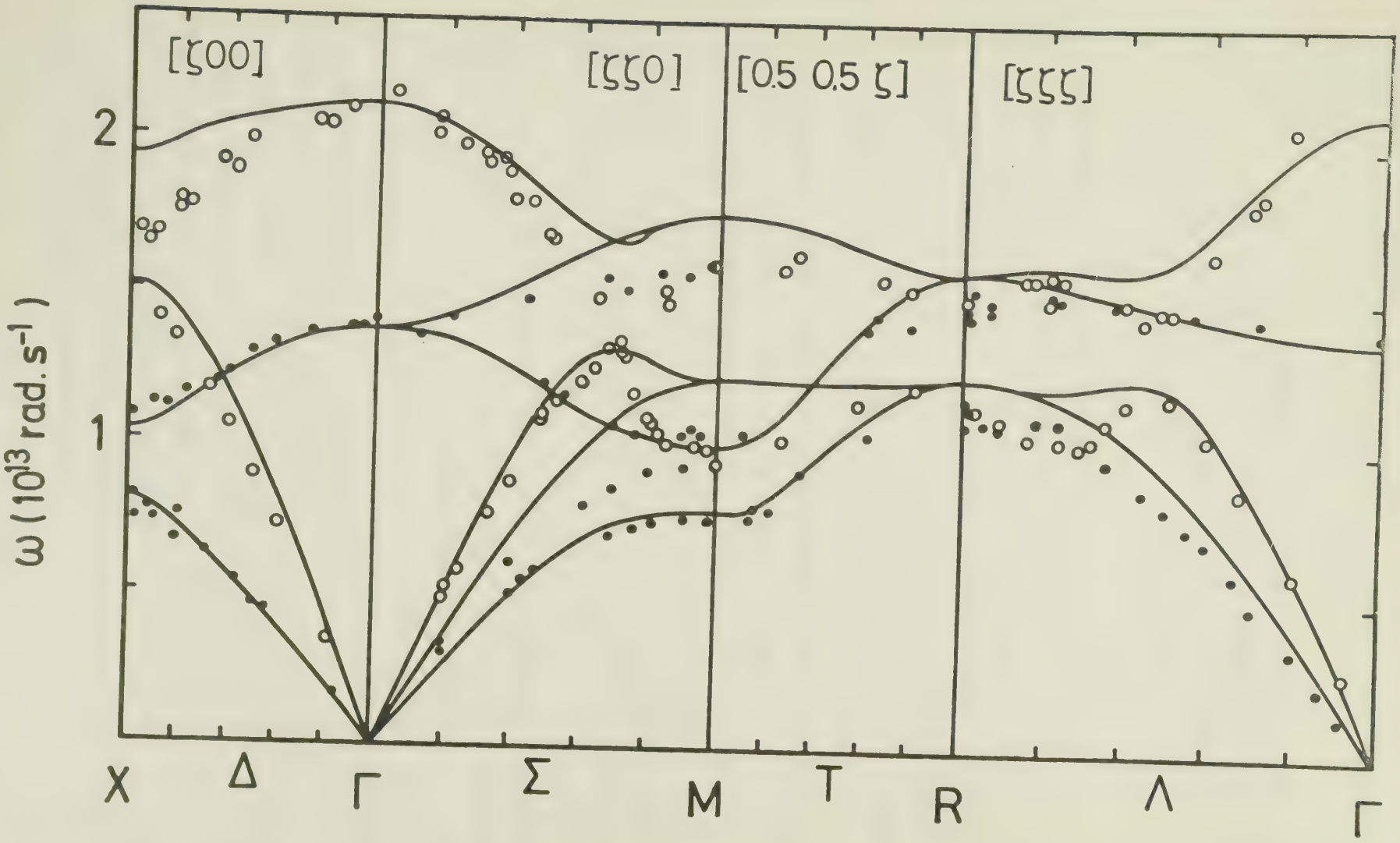


Abb. 14 Vergleich der Messungen mit dem Modell von Vetelino, Mitra und Namjoshi /18/

beobachteten Werte zwischen 2 und 3 liegen, zeigt schon, daß das Modell zu einfach ist, um die Wirklichkeit besser als in einer ersten groben Näherung zu beschreiben.

Vetelino, Mitra und Namjoshi /18/ schlugen ein modifiziertes Rigid Ion Model vor. Sie führten eine effektive Ionenladung ein, durch die es möglich wird, die Aufspaltung von longitudinal-optischem und transversal-optischem Zweig am Γ-Punkt exakt anzupassen.

Die Wechselwirkung der benachbarten Ionen wird durch 2 Kraftkonstanten beschrieben. Mit der Annahme, daß für zweitnächste Nachbarn Anion-Anion und Kation-Kation Wechselwirkung gleichgesetzt werden dürfen, kann dafür die Zahl der zusätzlichen Kraftkonstanten von 4 auf 2 herabgesetzt werden. Wechselwirkungen zwischen entfernter liegenden Ionen werden vernachlässigt. Der fünfte Modellparameter ist die effektive Ionenladung.

Als Eingabedaten werden die beiden Frequenzen der optischen Dispersionszweige im Grenzfall langer Wellen, also am Γ-Punkt, dem Zentrum der Brillouin Zone, benutzt. Dazu kommen die drei elastischen Konstanten. Da durch diese der Anstieg der akustischen Zweige bestimmt wird, ist als Folge der Wahl der Eingabedaten gute Übereinstimmung für langwellige Gitterschwingungen, also Phononen mit kleinem Wellenzahlvektor zu erwarten.

Abb. 14 zeigt die Ergebnisse des auf diese Weise modifizierten Rigid Ion Models. Man erkennt, daß es nur in einem beschränkten Bereich um Γ zu befriedigenden Resultaten führt. Die Abweichungen werden zum Zonenrand hin beträchtlich, nicht nur in der Δ-Richtung für den longitudinal-optischen Zweig, sondern auch für akustische Zweige in der Σ-Richtung. Die Annahme starrer Ionen kann also, auch wenn diesen geeignete effektive Ladungen zugeordnet werden, um die Aufspaltung der optischen Zweige korrekt wiederzugeben, nicht aufrechterhalten werden, wenn die Modellrechnungen mehr als nur erste Anhaltspunkte für den Verlauf der Dispersionskurven ergeben sollen. In die Abbildungen 14 bis 16 wurden wegen der besseren Übersicht nicht alle gemessenen Phononen eingezeichnet.

3.23 Modelle nach Karo und Hardy

Karo und Hardy /19/ schlugen verschiedene Modelle vor, mit denen eine verbesserte Beschreibung der Gittardynamik der Cs-Halogenide versucht wurde. Ein Ansatz ist die Zuordnung von elektronischen Polarisierbarkeiten zu jeder Ionenart. Dadurch erhält jedes Ion ein elektronisches Dipolmoment. Tessman, Kahn und Shockley /20/ berechneten aus Messungen der Gesamtpolarisation von Kristallen der NaCl Struktur einen konsistenten Satz von Ionenpolarisierbarkeiten, dem die Eingabewerte für das Polarisations-Dipol Modell (PD) entnommen wurden.

Eine weitere Verbesserung erzielten Karo und Hardy mit dem Deformations-Dipol Modell (DD), mit dem Szigetis Arbeiten /21/, /22/ über die effektiven Ladungen der Alkalihalogenide berücksichtigt wurden. Szigeti zeigte, daß die gemessenen Werte der statischen Dielektrizitätskonstanten für Alkalihalogenide nur erklärt werden konnten, wenn man mit "effektiven" Ionenladungen von 0.7 - 0.9 Elektronenladungen rechnete. Diese Abweichung kann durch die Annahme eines zusätzlichen Deformations-Dipolmomentes erklärt werden, das von der Abstoßung der Elektronenhüllen benachbarter Ionen herrührt, durch die bei Gitterschwingungen die Ladungsverteilung bezüglich des Rumpfes verändert wird. In erster Näherung wird die Änderung durch einen Dipol, den "Deformations-Dipol" beschrieben. Der wichtigste Effekt ist dabei die Abschirmung der Ionenladung, weniger die Verringerung der Gesamtpolarisierbarkeit.

Bei der Berechnung des Deformations-Dipolmomentes wurde davon ausgegangen, daß es durch die Konfiguration der 8.nächsten Nachbarn bestimmt ist. Es wurden Dispersionskurven für zwei Fälle berechnet

1) Der Deformationsdipol befindet sich am Ort des negativen Ions (DD-)
2) Der Deformationsdipol befindet sich am Ort des positiven Ions (DD+)

Nach ihrer Analyse der Zweiphononen Raman Spektren vermuteten

Karo und Hardy, daß das (DD-) Modell die realistischere Version sei.

Abb. 15 zeigt als ausgezogene Linien die Ergebnisse der Rechnungen für das (DD-) Modell im Vergleich mit den Phononenmessungen. Gegenüber dem Rigid Ion Model wird der Verlauf der optischen Zweige wesentlich besser wiedergegeben. Als unterbrochene Linien sind einige Zweige des PD Modells eingezeichnet, sie zeigen, welche drastischen Verbesserungen die Berücksichtigung des Deformationsdipols bewirkt. Die Übereinstimmung mit den (nicht dargestellten) Dispersionskurven des (DD+) Modells ist im Bereich der akustischen Zweige etwas besser, die Abweichungen gegenüber den optischen Phononen sind allerdings so groß, daß dem (DD-) Modell eindeutig der Vorzug zu geben ist. In beiden Modellen wurden die Frequenzen der unteren transversal akustischen Zweige zu niedrig berechnet. Ein Vergleich der Ergebnisse für CsJ mit den Messungen von Bührer und Hälg /2/ zeigt die gleiche Diskrepanz.

3.24 Breathing Shell Model

Das Schalenmodell stellt ebenfalls einen Versuch dar, neben der ionischen die elektronische Polarisierbarkeit zu berücksichtigen. Das geschieht in dem von Dick und Overhauser /23/ vorgeschlagenen und von Cochran, Woods und Brockhouse /24/ ausgearbeiteten Modell durch die Aufspaltung in einen geladenen Rumpf und eine geladene, masselose Schale, die durch Federn gekoppelt sind.

Schröder /25/ schlug vor, die Starrheit der Schalen aufzugeben und konzentrische Pumpbewegungen derselben zuzulassen, das führte zum Breathing Shell Model. Vergleiche mit gemessenen Dispersionen an Alkalihalogeniden mit NaCl Struktur ergaben, daß das Breathing Shell Model Ergebnisse lieferte, die sehr gute Übereinstimmung mit den experimentellen Dispersionskurven zeigten.

Mahler /26/ berechnete die Dispersion von CsCl, CsBr und CsJ

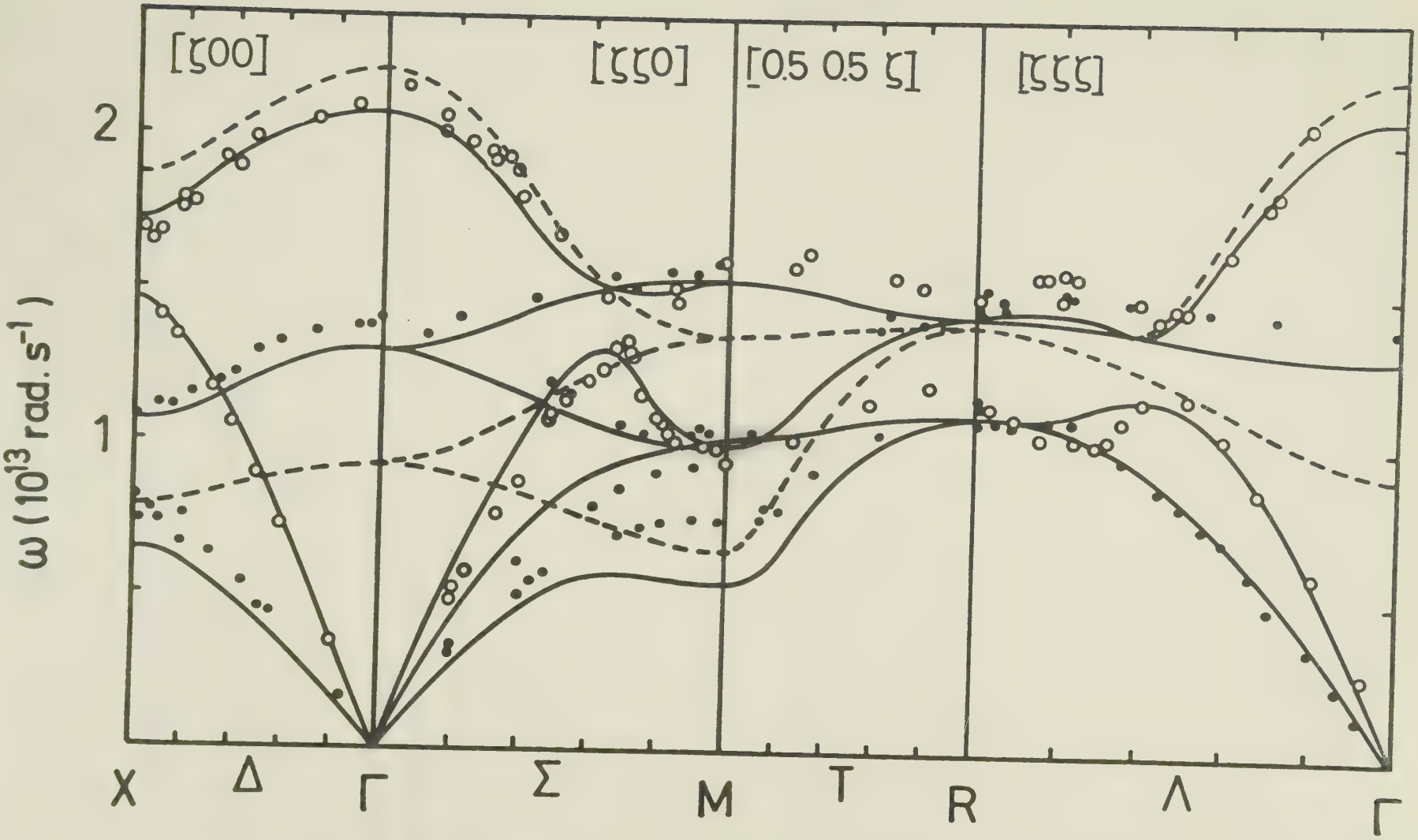


Abb. 15 Vergleich der Messungen mit dem (DD-)-Modell von Karo und Hardy /19/
--- PD-Modell

nach dem Breathing Shell Model. In der Rechnung wird jedes Gitterteilchen durch die beiden Modellteilchen Rumpf und Schale ersetzt. Das Modellpotential hängt außerdem noch vom Radius ab. Es wird speziell als Zweikörperpotential angesetzt, als langreichweitige Kräfte werden nur Coulombkräfte betrachtet, und alle Modellteilchen sollen adiabatisch deformierbar sein. In den Bewegungsgleichungen für die Modellteilchen kann man in der adiabatischen Näherung die Masse der Schalen gegen Null gehen lassen und erhält die dynamische Matrix für die Rumpfkoordinaten. Sie werden als die Koordinaten der Gitterteilchen betrachtet. Das Modellpotential wird aufgespalten in einen Coulombanteil, der von den Breathing-Koordinaten unabhängig ist, und einen Repulsivanteil, in dem nur noch die Wechselwirkung zwischen nächsten bzw. übernächsten Nachbarn zu berücksichtigen ist. In der ursprünglichen Rechnung wurde nur die Wechselwirkung zwischen nächsten Nachbarn behandelt, sie wird durch folgende Modellparameter beschrieben:

1) A,B für die Wechselwirkung zwischen den Schalen nächster Nachbarn,
2) G_1,G_2 für die Wechselwirkung zwischen Rumpf und Schalenmittelpunkt,
3) g_1,g_2, die Breathingfedern für die konzentrische Pumpbewegung der Schalen.

Dazu kommen die Schalenladungen Y_1 und Y_2 und die Gesamtladung Z. Es sind somit 9 Modellparameter aus makroskopischen Daten zu bestimmen. Zur Verfügung stehen dazu 7 Gleichungen, in denen folgende makroskopischen Größen mit ihnen verknüpft werden:

a) c_{11},c_{12} und c_{44}, die elastischen Konstanten, für die eine Beziehung aus der Näherung langer Wellen gefunden wird,
b) R_0' und Z^*, die effektive Federkonstante und die effektive Ladung, die über die Szigeti-Gleichungen eindeutig durch die Grenzwerte der Dielektrizitätskonstanten ε_s und ε_∞, sowie die Reststrahlenfrequenz ω_t bestimmt sind,
c) die Ionenpolarisierbarkeiten nach Tessman, Kahn und Shockley /20/; wobei die Einzelpolarisierbarkeiten entsprechend der

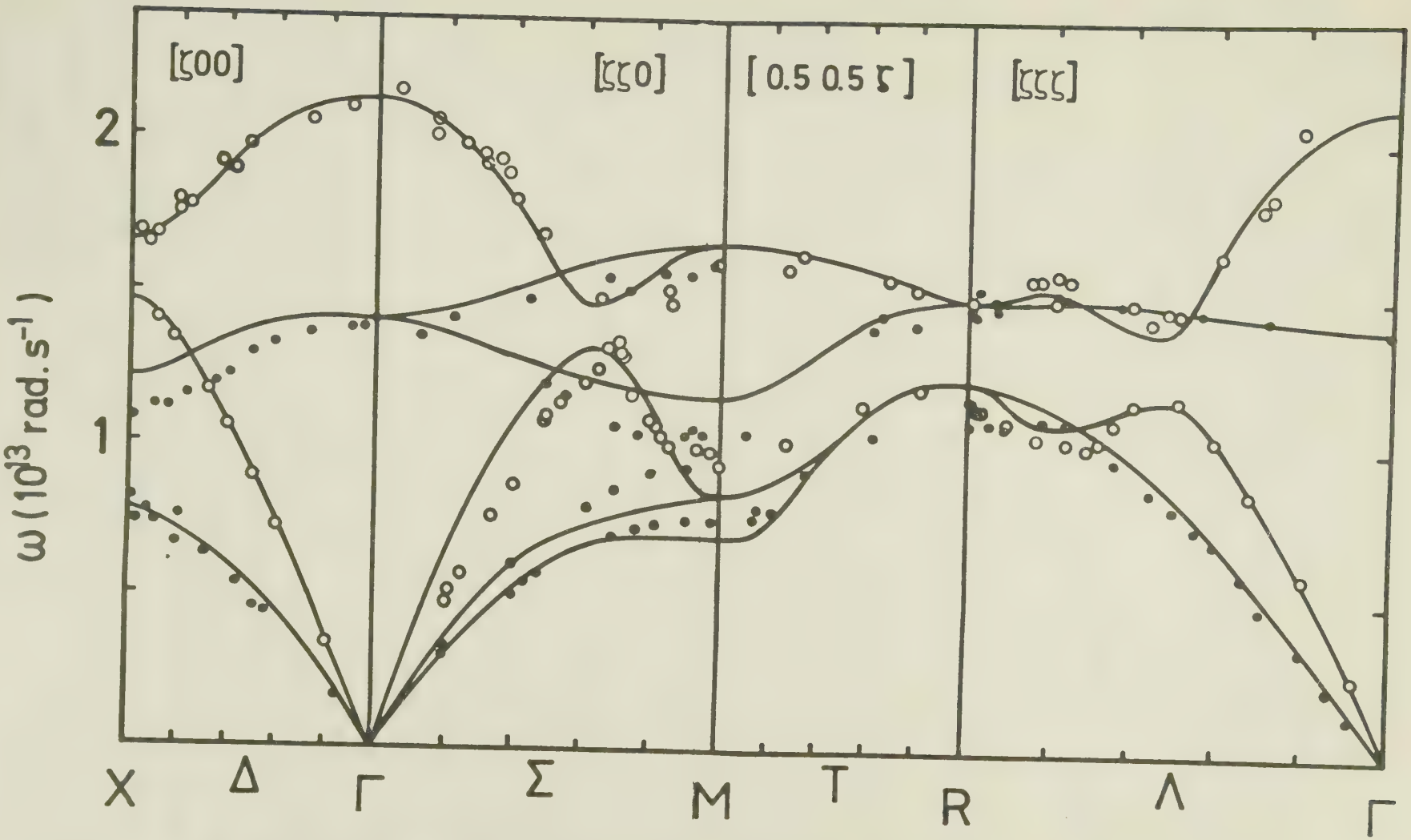


Abb. 16 Vergleich der Messungen mit BSM Rechnungen von Mahler /26/

kleineren Gesamtpolarisierbarkeit in der CsCl Struktur modifiziert wurden.

Es sind 2 Zusatzbedingungen erforderlich, um eindeutige Lösungen des nichtlinearen Gleichungssystems zu erhalten. Mahler setzte $Z = 1$ und nahm weiterhin an, daß der Breathing-Effekt jeder Ionensorte mit der elektronischen Polarisierbarkeit α derselben korreliert sei nach

$$b_j = c\,\alpha_j \quad , j = 1,2 \quad , c \text{ unabhängig von } j \text{ und}$$

$$b_j = \frac{A^2}{4A + g_j} .$$

Die Dispersionskurven, die sich aus dieser Rechnung ergeben, sind in Abb. 16 dargestellt.

Es zeigt sich, daß die Einführung der Schale und des Breathing-Effektes gegenüber den einfachen Dipolmodellen weitere Verbesserungen ergeben. Das macht sich zum Beispiel für longitudinal optische, aber auch transversal akustische Phononen bemerkbar. Die Übereinstimmung der Modellrechnung mit den gemessenen Phononen in der Δ - Richtung ist bis auf den transversal optischen Zweig sehr gut. Für diesen Zweig liegen die theoretischen Werte zum Zonenrand (X) hin systematisch zu hoch, am Zonenrand beträgt die Differenz etwa 10%. Messungen der Absorption im Ultrarot, die durch den Einbau von Fremdionen in CsCl verursacht wurde /27/, lassen, ebenso wie ein Vergleich der CsJ Rechnung mit den Experimenten von Bührer und Hälg /2/, vermuten, daß es sich hierbei um einen physikalischen Effekt handelt, der im Modell nicht oder nur ungenügend berücksichtigt wird. Mahler versuchte die Diskrepanz in einem Modell zu beseitigen, das auch die Wechselwirkung übernächster Nachbarn berücksichtigte und bei dem eine Anpassung an die Phononendaten in der Δ - Richtung durchgeführt wurde /26/. Die Ergebnisse sind die gleichen wie die einer weiteren Rechnung, bei der statt der Phononendaten die Ionenradien als makroskopische Information benutzt wurden /28/; es gelingt zwar, die Diskrepanz in der Δ - Richtung vollkommen zu beseitigen, dafür wird aber die Übereinstimmung mit den Messungen in den übrigen Richtungen wesentlich verschlechtert.

Nach Abschluß der Messungen wurden die Modellparameter des Breathing Shell Models an willkürlich ausgewählte Phononenmessungen in den Hauptsymmetrierichtungen und außerhalb derselben angepaßt. Eine Anpassung an sämtliche Meßwerte hätte zu viel Rechenzeit beansprucht. Außerdem zeigte sich, daß eine Erhöhung von 68 auf 132 Phononen kaum Auswirkungen auf den Verlauf der Dispersionskurven hatte.

Tabelle III

Modellparameter verschiedener BSM-Rechnungen für CsBr

Parameter	Mahler	132 HS †	121 AS ††	253(HS+AS)
A $(e^2/2v)$	10.84	9.27	9.42	9.46
B $(e^2/2v)$	-1.13	-0.84	-0.81	-0.82
G1 $(e^2/2v)$	1054	1123	2439	3323
G2 $(e^2/2v)$	117	136	129	137
g1 $(e^2/2v)$	242	213	147	144
g2 $(e^2/2v)$	162	247	240	246
Y1 (e)	-6.42	-4.85	-8.28	-9.96
Y2 (e)	-2.47	-2.73	-2.82	-2.88
Z (e)	1.00	0.96	0.98	0.98
S.E. $(10^{13}$rad/s)		0.035	0.036	0.033

† HS - Phononen in Hauptsymmetrierichtungen
†† AS - Phononen außerhalb der Hauptsymmetrierichtungen

Tabelle III zeigt die Werte der Modellparameter für drei verschiedene Anpassungsrechnungen zusammen mit den aus makroskopischen Daten berechneten Parametern von Mahler. Die Parameter liegen in physikalisch sinnvollen Bereichen. Außerdem sind keine signifikanten Unterschiede zwischen Parametern, die an Phononen in den Hauptsymmetrierichtungen angepaßt waren und denen, die an Phononen zwischen den Hauptsymmetrierichtungen angepaßt waren, festzustellen. Die Parameter, die aus der Anpassung an die Gesamtmenge der in den anderen beiden Rechnungen verwendeten Pho-

nonen resultieren, liegen keineswegs immer zwischen den Parametern dieser Rechnungen. Die Schwankungen zwischen den einzelnen Anpassungen können als Anhaltspunkte für die Unsicherheit der Parameterbestimmung dienen. Das zeigt sich auch darin, daß die Dispersionskurven dieser Rechnungen praktisch identisch sind und die Werte für

$$(S.E.) = \left[\frac{1}{N - K} \sum_i (\omega^i_{obs.} - \omega^i_{calc.})^2\right]^{1/2}$$

sich kaum unterscheiden.

Die Dispersionskurven für die Hauptsymmetrierichtungen, die aus der Anpassung an 253 Phononen resultieren, sind in Abb. 17 dargestellt. Die Übereinstimmung dieser Modellrechnung mit den Phononen des transversal-optischen Zweiges in der Δ - Richtung konnte wesentlich verbessert werden, ohne daß sich das nachteilig auf andere Zweige oder Richtungen auswirkt. Auch in der Σ - Richtung werden nun die Meßwerte von der Rechnung gut beschrieben. Besonders äußert sich das für die beiden transversal-optischen Zweige und alle akustischen Zweige in der Nähe des Zonenrandes. Die Bereiche in den Richtungen Σ und Λ, in denen sich die Zweige LO und LA stark annähern, sind mit einem Wechsel der Polarisation verbunden. Infolge der Wechselwirkung der Zweige sind dort die Unsicherheiten der Messung größer.

Einen Anhaltspunkt dafür, ob ein Modell, bzw. hier ein Satz von Parametern, physikalisch realistisch sein kann, bieten die aus den Parametern berechneten makroskopischen Größen, die mit Meßwerten verglichen werden können. Da die Parameter nur mit erheblichen Unsicherheiten bestimmt sind, wird man sich dabei auf einen Vergleich der Größenordnungen beschränken müssen. In Tabelle IV sind einige dieser meßbaren Größen und die Werte, die sich aus den verschiedenen Angleichsrechnungen ergeben, aufgeführt. Bei den elastischen Konstanten fällt besonders der geringe Wert von c_{12} auf. Im Gegensatz zu c_{11} und c_{44} gibt es für c_{12} keinen Zweig der Dispersion, dessen Anstieg allein durch den Wert dieser Konstanten bestimmt wird, sondern c_{12} geht nur

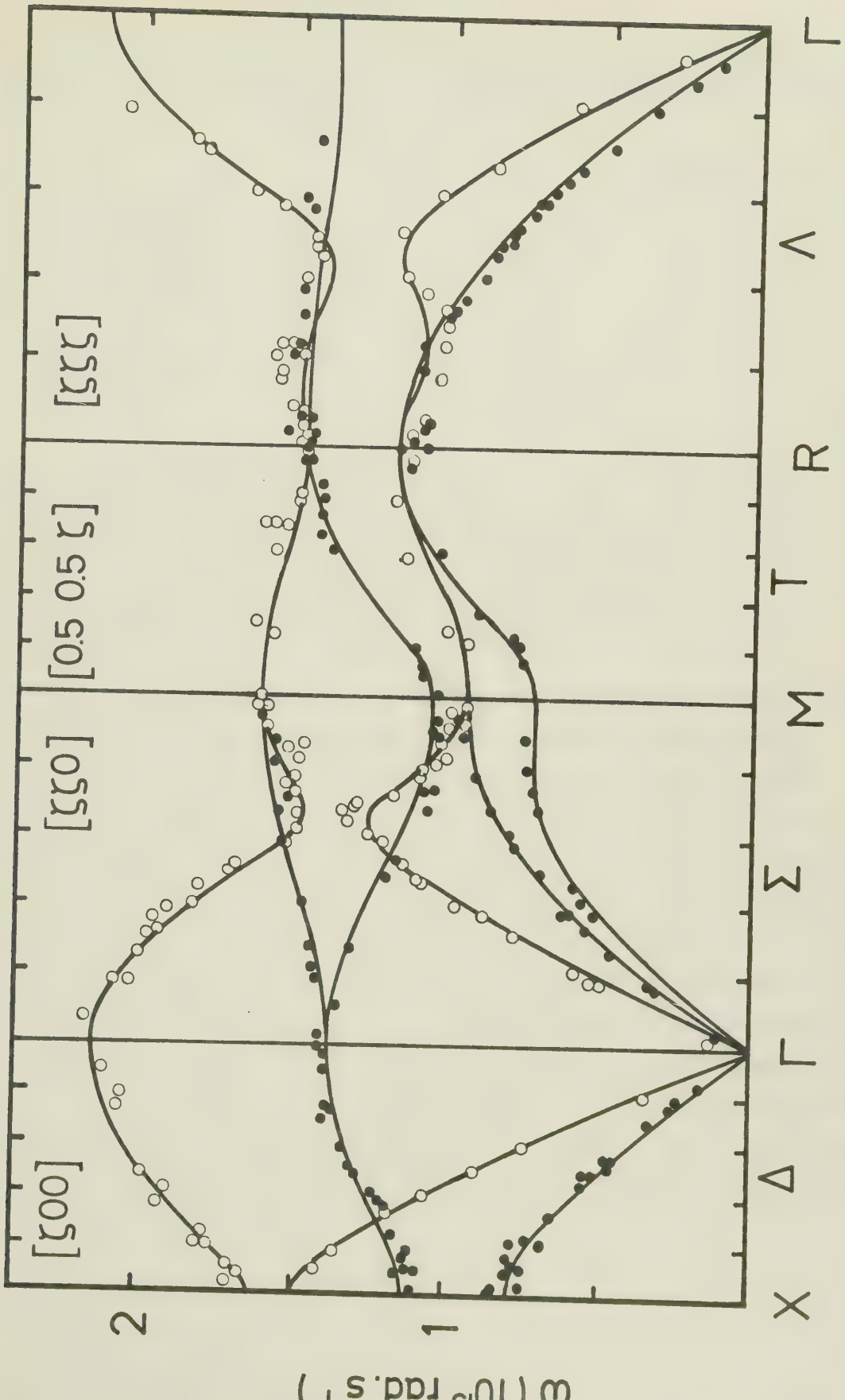


Abb. 17 Breathing Shell Model angepaßt an 253 Phononen

Tabelle IV

Aus den Modellparametern der Tabelle III berechnete Größen

	132 HSR	121 AS	253 HSR+AS	Meßwert
c_{11} (10^{11}dyn/cm^2)	2.99	3.00	3.00	3.08 /33/
c_{12} (10^{11}dyn/cm^2)	0.62	0.44	0.44	0.83 /33/
c_{44} (10^{11}dyn/cm^2)	0,85	0.85	0.86	0.76 /33/
ω_{TO} (10^{13}rad/s)	1.38	1.37	1.38	1.39 /12/
ω_{LO} (10^{13}rad/s)	2.13	2.13	2.13	2.13 /13/
α (10^{-24}cm^3)	5.78	6.78	6.85	7.02 /20/

in Linearkombinationen mit c_{11} oder c_{44} ein. Die Dispersionskurven sind deshalb recht unempfindlich gegenüber dem Wert von c_{12}, bzw. c_{12} kann aus gemessenen Dispersionskurven nur mit geringerer Genauigkeit ermittelt werden. Die Übereinstimmung mit den Werten für ω_{TO} und ω_{LO} ist sehr gut.

Für die Polarisierbarkeit α berechnet man aus den Modellparametern zu kleine Werte. Da das auch für die Messungen bei 80° K zutrifft, kann man vermuten, daß im Breathing Shell Model der Einfluß der Polarisierbarkeit auf die Phononenfrequenzen in CsBr zu stark bewertet wird /3/. Allerdings sind die Unsicherheiten in den Parametern zu groß, um definitive Aussagen zu gestatten.

Die Abbildungen 11 und 12 zeigen Dispersionsflächen, zu deren Berechnung das Breathing Shell Model mit den Parametern benutzt wurde, die aus der Anpassung an 253 Phononen resultieren. Über der (100)-Ebene sind die ω-Werte der Flächen aufgetragen, zu denen in Δ - und Σ - Richtung der obere transversal-akustische bzw. der longitudinal-optische Zweig gehören. Dazu zeigen die Abbildungen Meßwerte und deren Abweichung vom theoretischen Wert bei gleichem $\vec{q}$.

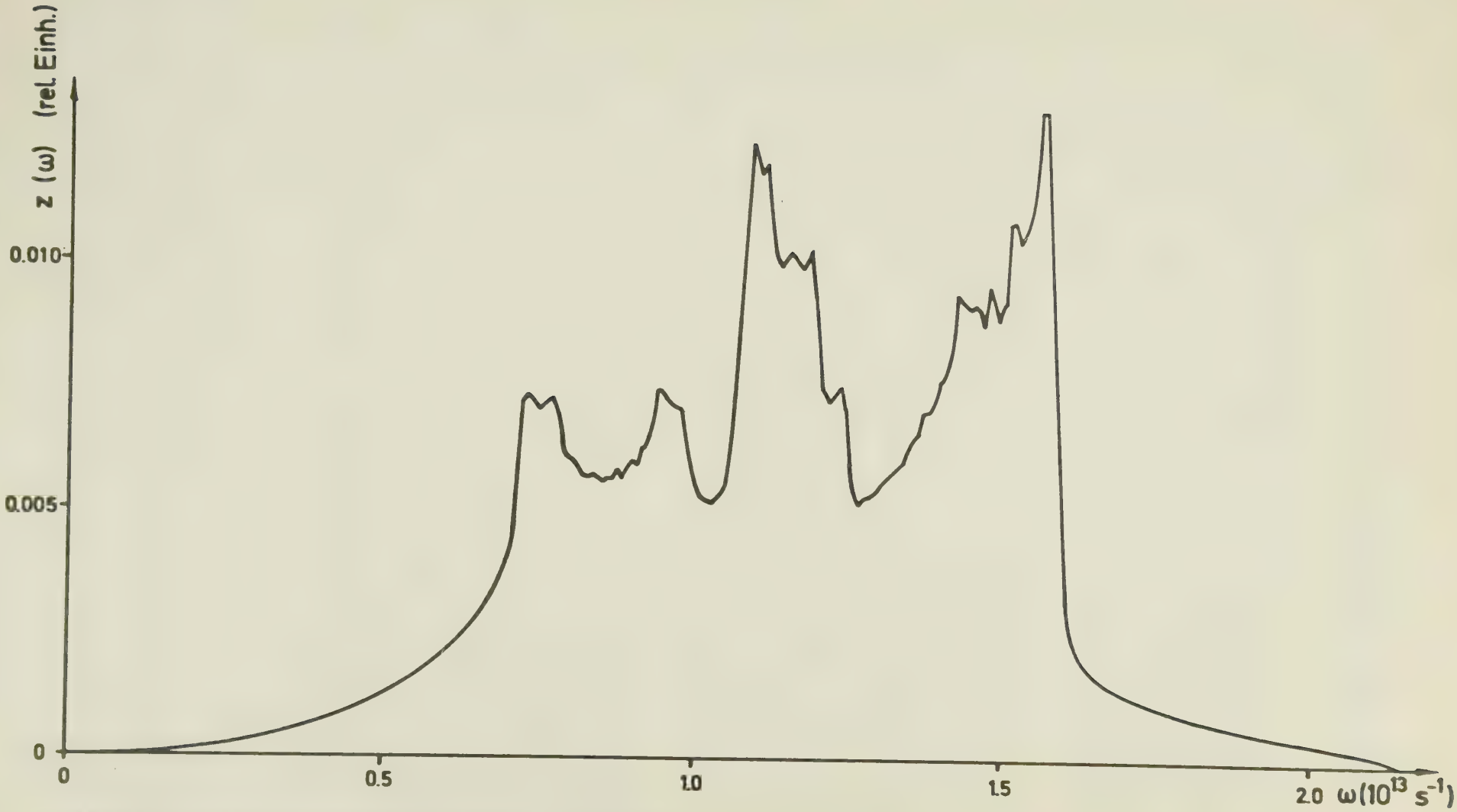


Abb. 18 Phononenfrequenzverteilung von CsBr

4. Berechnung der Phononenfrequenzverteilung und der spezifischen Wärme

4.1 Phononenfrequenzverteilung

Die Übereinstimmung des an 253 Phononen angepaßten Breathing Shell Models mit den Meßwerten läßt erwarten, daß mit diesem Modell Phononenfrequenzen an jedem beliebigen Punkt der Brillouin Zone in guter Näherung berechnet werden können. Die Zustandsdichte erhält man durch Summation aller möglichen Zustände $\omega_{q,j}$.

Zur Berechnung ist es nötig, für eine möglichst große Zahl von Wellenzahlvektoren $\vec{q}$ im irreduziblen Bereich der ersten Brillouin Zone die dynamische Matrix aufzustellen und zu diagonalisieren. Da man zur Berechnung einer Phononenfrequenzverteilung mit guter Auflösung und Statistik sehr viele Frequenzen benötigt, ist das Verfahren sehr rechenintensiv. Es wurde nach dem von Gilat und Dolling angegebenen Extrapolationsverfahren /29/ verbessert; neben den Frequenzen wurden auch die Gradienten $\mathrm{grad}_q \omega(q)$ berechnet und zur näherungsweisen Extrapolation weiterer Frequenzen herangezogen.

Abb. 18 zeigt eine mit dieser Methode berechnete Frequenzverteilung. Sie enthält über 140 Millionen Frequenzen und wurde auf 1 normiert. Ein Vergleich mit dem Verlauf der Dispersion in den Hauptsymmetrierichtungen (Abb. 17) ergibt, daß die kritischen Punkte wiedergegeben werden, die Frequenzverteilung aber außerdem noch eine Anzahl kritischer Punkte aus dem Innern der Brillouin Zone enthält. Zum genauen Verständnis der Struktur der Frequenzverteilung ist die Kenntnis aller kritischen Punkte im gesamten irreduziblen Teil der Brillouin Zone nötig.

4.2 Spezifische Wärme

Aus der Zustandsdichte der Phononen kann die spezifische Wärme als Funktion der Temperatur berechnet werden. Die Ableitung wurde schon 1912 von Born und von Kármán angegeben /30/:

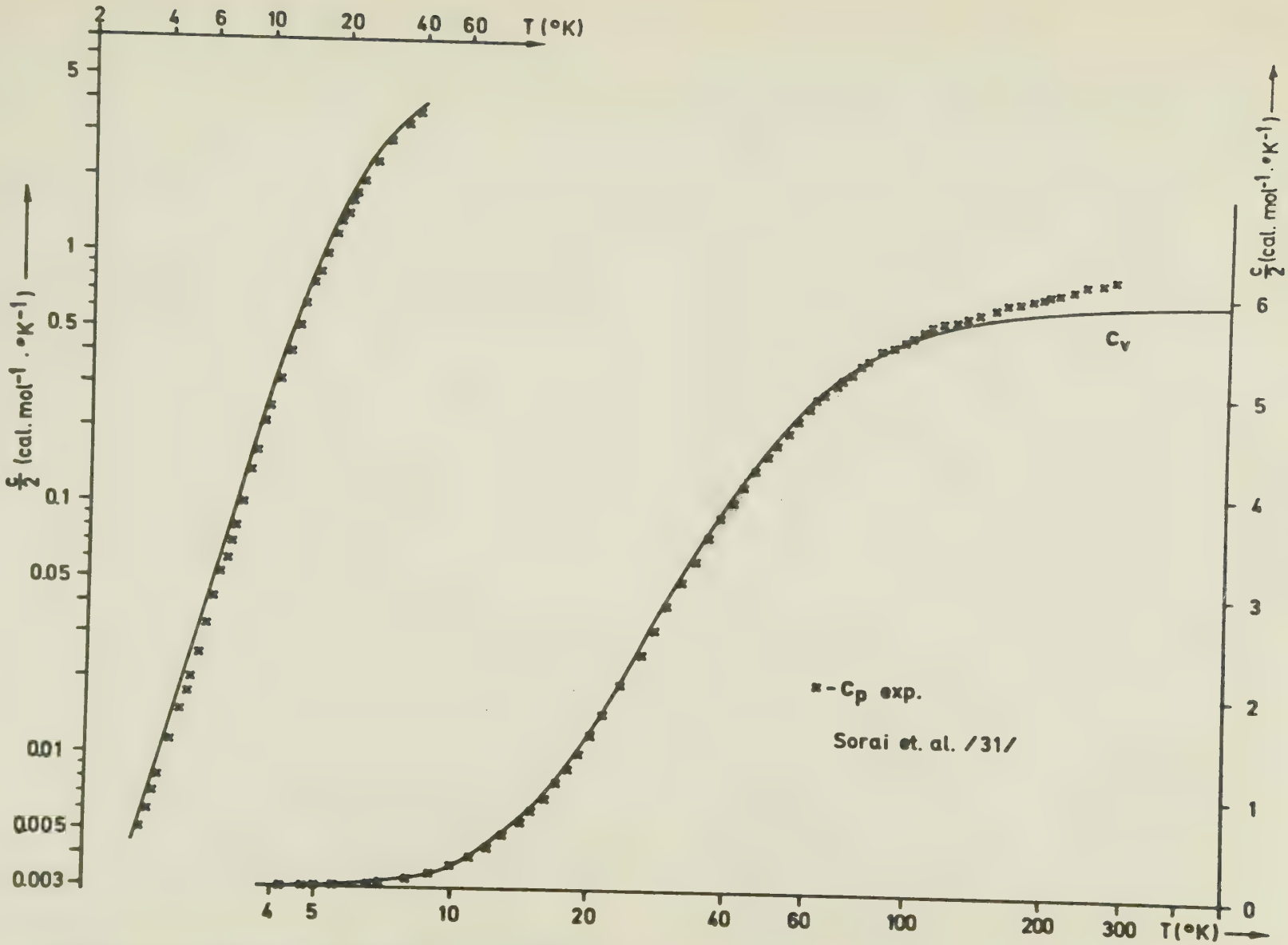


Abb. 19 Spezifische Wärme von CsBr

$$c_v(T) = k \int z(\omega) \left[\frac{\frac{\hbar\omega}{2kT}}{\sinh \frac{\hbar\omega}{2kT}} \right]^2 d\omega$$

Die Ergebnisse der Rechnung sowie die experimentellen Werte für c_p von Sorai /31/ sind in Abb. 19 dargestellt. Die spezifische Wärme wurde durch die Zahl der Atome im Molekül dividiert.

Beim Vergleich muß beachtet werden, daß eigentlich die Dichte der Zustände $z(\omega)$ temperaturabhängig ist und daß sich bei Temperaturen über 100°K die Werte von c_p und c_v deutlich unterscheiden. Auch eine c_p-c_v-Korrektur führt in diesem Bereich zu keiner guten Übereinstimmung, die c_p-Kurve verläuft oberhalb der Meßpunkte. Ein solches Verhalten ist nach einer Untersuchung von Sorai zu erwarten, der gezeigt hat, daß die anharmonischen Beiträge zur spezifischen Wärme in CsJ und CsBr groß und negativ sind, im Vergleich zu anderen Alkalihalogeniden /32/.

5. Zusammenfassung

Die Phononendispersion in CsBr wurde bei Raumtemperatur durch unelastische Neutronenstreuung ermittelt. Dabei wurde eine Flugzeitapparatur mit pseudostatistischem Chopper benutzt. In einer großen Zahl von Experimenten konnten über 800 Phononen in den Ebenen (100) und (110) gemessen werden. Die Übereinstimmung mit vergleichbaren Daten aus anderen Untersuchungen ist sehr gut.

Die Dispersion von CsBr war schon vor Beginn der Experimente Gegenstand mehrerer theoretischer Arbeiten, und die Ergebnisse konnten deshalb mit verschiedenen Modellrechnungen verglichen werden. Dabei wurde deutlich, daß die Berücksichtigung der Polarisierbarkeiten wesentlich bessere Voraussagen über den Dispersionsverlauf ermöglichte, als sie mit einfacheren Modellen gemacht werden konnten. Durch Anpassung des Breathing Shell Models, bei der auch Phononen außerhalb der Hauptsymmetrierichtungen berücksichtigt wurden, konnte ein Parametersatz gefunden werden, mit dem die Modellrechnung die Daten gut beschreibt. Das angepaßte Breathing Shell Model wurde zur Berechnung der Zustandsdichte der Phononen benutzt.

Durch eine experimentelle Bestimmung der Polarisationsvektoren $\vec{e}(\kappa|\frac{q}{j})$ wäre es möglich, auch noch zwischen Modellen zu unterscheiden, die auf gleiche Dispersionsrelationen führen. Weil dazu nicht nur die Lagen, sondern auch die Intensitäten der Phononenpeaks genau gemessen werden müssen, wobei anharmonische Effekte zu berücksichtigen sind, ist eine solche Untersuchung allerdings mit noch erheblich größerem experimentellem Aufwand verbunden, als die Messung der Phononendispersion.

6. Anhang

Tabelle V

Liste der in CsBr außerhalb der Hauptsymmetrierichtungen gemessenen Phononen (300°K)

Es sind die 3 Komponenten von $\zeta = a_o q/2$ und die Frequenzen (in 10^{13} rad sec^{-1}) angegeben. Alle Richtungsangaben gelten ±2.5°, die genaue Richtung kann aus den Komponenten berechnet werden.

ζ_x	ζ_y	ζ_z	ω
5° gegen Δ			
0.09	0.01	0.0	2.13
0.32	0.04	0.0	1.85
0.38	0.03	0.0	1.82
0.41	0.02	0.0	1.75
0.42	0.04	0.0	1.76
0.45	0.03	0.0	1.67
0.48	0.06	0.0	1.63
0.49	0.05	0.0	1.64
0.06	0.01	0.0	1.38
0.14	0.01	0.0	1.34
0.16	0.01	0.0	1.37
0.19	0.01	0.0	1.31
0.22	0.02	0.0	1.28
0.25	0.02	0.0	1.29
0.26	0.02	0.0	1.26
0.27	0.03	0.0	1.25
0.33	0.02	0.0	1.20
0.34	0.03	0.0	1.20
0.43	0.05	0.0	1.34
0.44	0.04	0.0	1.40
0.45	0.05	0.0	1.39
0.46	0.03	0.0	1.43
0.48	0.03	0.0	1.45
0.28	0.02	0.0	1.01
0.30	0.02	0.0	1.05
0.32	0.03	0.0	1.12
0.34	0.02	0.0	1.15
0.35	0.03	0.0	1.17
0.36	0.03	0.0	1.19
0.36	0.04	0.0	1.24
0.37	0.02	0.0	1.17
0.03	0.03	0.37	1.21
0.38	0.02	0.0	1.21
0.02	0.02	0.39	1.16
0.40	0.03	0.0	1.15
0.42	0.03	0.0	1.14
0.47	0.03	0.0	1.12
0.50	0.05	0.0	1.12
0.13	0.02	0.0	0.31
0.26	0.02	0.0	0.54
0.29	0.01	0.0	0.55
0.33	0.02	0.0	0.62
0.38	0.04	0.0	0.68
0.40	0.02	0.0	0.73
0.41	0.03	0.0	0.73
0.42	0.03	0.0	0.80
0.44	0.03	0.0	0.79
0.44	0.03	0.0	0.81
0.46	0.03	0.0	0.82
0.47	0.06	0.0	0.82

ζ_x	ζ_y	ζ_z	ω
10° gegen Δ			
0.13	0.02	0.0	2.04
0.18	0.04	0.0	2.04
0.27	0.04	0.0	1.95
0.31	0.04	0.0	1.89
0.34	0.05	0.0	1.86
0.36	0.08	0.0	1.79
0.40	0.05	0.0	1.79
0.40	0.08	0.0	1.79
0.43	0.07	0.0	1.69
0.46	0.09	0.0	1.72
0.50	0.09	0.0	1.60
0.04	0.01	0.0	1.36
0.12	0.02	0.0	1.38
0.15	0.02	0.0	1.38
0.21	0.04	0.0	1.33
0.24	0.04	0.0	1.31
0.26	0.05	0.0	1.28
0.27	0.05	0.0	1.30
0.31	0.06	0.0	1.28
0.43	0.08	0.0	1.35
0.45	0.07	0.0	1.40
0.45	0.07	0.0	1.42
0.47	0.10	0.0	1.48
0.17	0.03	0.0	0.64
0.24	0.05	0.0	0.84
0.28	0.04	0.0	1.01
0.30	0.06	0.0	1.05
0.30	0.07	0.0	1.05
0.33	0.05	0.0	1.14
0.34	0.06	0.0	1.15
0.36	0.06	0.0	1.20
0.37	0.06	0.0	1.19
0.39	0.06	0.0	1.23
0.40	0.08	0.0	1.23
0.42	0.07	0.0	1.20
0.44	0.08	0.0	1.17
0.45	0.08	0.0	1.16
0.47	0.08	0.0	1.18
0.49	0.08	0.0	1.12
0.06	0.01	0.0	0.14
0.26	0.05	0.0	0.53
0.30	0.05	0.0	0.58
0.34	0.08	0.0	0.64
0.36	0.06	0.0	0.69
0.40	0.07	0.0	0.76
0.43	0.07	0.0	0.79
0.45	0.08	0.0	0.82

15° gegen Δ

0.12	0.04	0.0	2.04
0.12	0.03	0.0	2.13
0.18	0.04	0.0	2.01
0.29	0.07	0.0	1.95
0.30	0.09	0.0	1.89
0.33	0.08	0.0	1.80
0.43	0.11	0.0	1.66
0.45	0.14	0.0	1.63
0.47	0.14	0.0	1.64
0.49	0.14	0.0	1.60
0.19	0.06	0.0	1.34
0.22	0.05	0.0	1.31
0.23	0.06	0.0	1.34
0.24	0.07	0.0	1.33
0.26	0.07	0.0	1.34
0.49	0.15	0.0	1.52
0.02	0.01	0.0	0.08
0.09	0.02	0.0	0.36
0.14	0.03	0.0	0.53
0.16	0.05	0.0	0.56
0.19	0.05	0.0	0.63
0.30	0.08	0.0	0.98
0.35	0.09	0.0	1.16
0.36	0.11	0.0	1.17
0.44	0.12	0.0	1.68
0.44	0.12	0.0	1.18
0.44	0.14	0.0	1.20
0.45	0.10	0.0	1.17
0.46	0.10	0.0	1.18
0.05	0.01	0.0	0.09
0.06	0.01	0.0	0.12
0.06	0.02	0.0	0.13
0.18	0.04	0.0	0.38
0.23	0.05	0.0	0.49
0.30	0.08	0.0	0.61
0.38	0.09	0.0	0.76
0.45	0.13	0.0	0.86
0.49	0.14	0.0	0.87
0.50	0.15	0.0	0.91

20° gegen Δ

0.16	0.06	0.0	2.03
0.25	0.08	0.0	1.89
0.34	0.11	0.0	1.77
0.44	0.15	0.0	1.62
0.45	0.18	0.0	1.65
0.45	0.16	0.0	1.67
0.49	0.18	0.0	1.63
0.02	0.01	0.0	1.37
0.09	0.03	0.0	1.40
0.16	0.06	0.0	1.37
0.16	0.05	0.0	1.39
0.21	0.07	0.0	1.35
0.25	0.10	0.0	1.34
0.30	0.11	0.0	1.32
0.39	0.16	0.0	1.46
0.47	0.15	0.0	1.52
0.30	0.11	0.0	1.02
0.34	0.11	0.0	1.14
0.36	0.12	0.0	1.21
0.39	0.13	0.0	1.17
0.39	0.15	0.0	1.20
0.43	0.14	0.0	1.20
0.44	0.15	0.0	1.17
0.49	0.17	0.0	1.15
0.20	0.07	0.0	0.47
0.25	0.08	0.0	0.58
0.28	0.10	0.0	0.59
0.30	0.12	0.0	0.62
0.32	0.11	0.0	0.72
0.39	0.15	0.0	0.80
0.41	0.13	0.0	0.81
0.45	0.17	0.0	0.93
0.47	0.17	0.0	0.88
0.49	0.18	0.0	0.94
0.50	0.19	0.0	0.91
0.50	0.17	0.0	0.91
0.50	0.20	0.0	0.91

25° gegen Δ

0.13	0.06	0.0	2.07
0.13	0.06	0.0	2.05
0.15	0.07	0.0	2.06
0.19	0.10	0.0	2.01
0.37	0.16	0.0	1.68
0.46	0.23	0.0	1.57
0.16	0.07	0.0	1.40
0.32	0.16	0.0	1.44
0.40	0.19	0.0	1.37
0.44	0.18	0.0	1.40
0.46	0.21	0.0	1.46
0.48	0.22	0.0	1.52
0.25	0.11	0.0	0.87
0.31	0.13	0.0	1.09
0.35	0.18	0.0	1.21
0.38	0.17	0.0	1.24
0.38	0.19	0.0	1.24
0.39	0.19	0.0	1.27
0.40	0.17	0.0	1.25
0.41	0.17	0.0	1.15
0.45	0.20	0.0	1.11
0.46	0.20	0.0	1.12
0.48	0.24	0.0	1.04
0.04	0.02	0.0	0.10
0.05	0.02	0.0	0.13
0.06	0.03	0.0	0.13
0.12	0.05	0.0	0.28
0.23	0.09	0.0	0.54
0.24	0.10	0.0	0.56
0.33	0.14	0.0	0.71
0.35	0.17	0.0	0.75
0.37	0.18	0.0	0.78
0.44	0.20	0.0	0.96
0.47	0.22	0.0	0.93
0.49	0.25	0.0	1.00

30° gegen Δ

0.02	0.01	0.0	2.16
0.12	0.07	0.0	2.09
0.13	0.07	0.0	2.05
0.38	0.24	0.0	1.62
0.50	0.29	0.0	1.58
0.50	0.31	0.0	1.58
0.04	0.02	0.0	1.39
0.12	0.07	0.0	1.40
0.15	0.08	0.0	1.40
0.16	0.09	0.0	1.41
0.19	0.11	0.0	1.38
0.22	0.12	0.0	1.38
0.28	0.15	0.0	1.44
0.29	0.18	0.0	1.41
0.33	0.18	0.0	1.43
0.40	0.21	0.0	1.47
0.41	0.22	0.0	1.48
0.44	0.26	0.0	1.52
0.47	0.25	0.0	1.50
0.19	0.10	0.0	0.81
0.21	0.11	0.0	0.85
0.26	0.14	0.0	0.98
0.27	0.14	0.0	1.01
0.28	0.16	0.0	1.10
0.29	0.17	0.0	1.09
0.33	0.19	0.0	1.20
0.38	0.23	0.0	1.28
0.39	0.23	0.0	1.21
0.44	0.28	0.0	1.09
0.49	0.28	0.0	1.09
0.50	0.32	0.0	1.05
0.15	0.09	0.0	0.39
0.15	0.08	0.0	0.41
0.22	0.13	0.0	0.50
0.28	0.16	0.0	0.64
0.30	0.18	0.0	0.67
0.33	0.21	0.0	0.75
0.34	0.18	0.0	0.78
0.35	0.19	0.0	0.77
0.38	0.23	0.0	0.85
0.38	0.23	0.0	0.89
0.39	0.22	0.0	0.85
0.42	0.26	0.0	0.87

35° gegen Δ

0.11	0.08	0.0	2.06
0.12	0.09	0.0	2.06
0.21	0.13	0.0	1.86
0.22	0.17	0.0	1.83
0.30	0.21	0.0	1.62
0.44	0.29	0.0	1.60
0.49	0.37	0.0	1.59
0.49	0.34	0.0	1.58
0.00	0.00	0.0	1.41
0.06	0.04	0.0	1.40
0.22	0.16	0.0	1.41
0.22	0.15	0.0	1.44
0.28	0.19	0.0	1.45
0.30	0.21	0.0	1.44
0.35	0.24	0.0	1.50
0.39	0.28	0.0	1.47
0.41	0.29	0.0	1.54
0.41	0.30	0.0	1.52
0.44	0.32	0.0	1.57
0.47	0.34	0.0	1.60
0.49	0.36	0.0	1.59
0.13	0.10	0.0	0.58
0.21	0.14	0.0	0.86
0.24	0.18	0.0	1.01
0.27	0.20	0.0	1.12
0.39	0.25	0.0	1.21
0.40	0.28	0.0	1.16
0.45	0.33	0.0	1.06
0.46	0.31	0.0	1.03
0.49	0.36	0.0	1.00
0.50	0.36	0.0	0.98
0.04	0.03	0.0	0.12
0.17	0.13	0.0	0.46
0.23	0.16	0.0	0.57
0.23	0.16	0.0	0.58
0.33	0.25	0.0	0.78
0.38	0.26	0.0	0.81
0.38	0.29	0.0	0.85
0.39	0.29	0.0	0.88
0.40	0.26	0.0	0.87
0.47	0.35	0.0	0.96
0.49	0.37	0.0	0.97

40° gegen Δ

0.13	0.11	0.0	2.03
0.16	0.13	0.0	1.92
0.18	0.16	0.0	1.93
0.20	0.15	0.0	1.82
0.22	0.20	0.0	1.72
0.25	0.23	0.0	1.66
0.25	0.23	0.0	1.65
0.35	0.28	0.0	1.54
0.36	0.32	0.0	1.51
0.40	0.36	0.0	1.52
0.46	0.40	0.0	1.59
0.47	0.39	0.0	1.55
0.47	0.38	0.0	1.58
0.49	0.41	0.0	1.57
0.50	0.44	0.0	1.55
0.15	0.13	0.0	1.45
0.27	0.23	0.0	1.49
0.29	0.26	0.0	1.52
0.31	0.25	0.0	1.48
0.35	0.30	0.0	1.45
0.36	0.29	0.0	1.52
0.37	0.31	0.0	1.52
0.41	0.34	0.0	1.52
0.42	0.34	0.0	1.52
0.46	0.38	0.0	1.49
0.47	0.42	0.0	1.59
0.48	0.41	0.0	1.55
0.49	0.39	0.0	1.55

40° gegen Δ (Fortsetzung)

0.11	0.09	0.0	0.52
0.13	0.12	0.0	0.68
0.22	0.20	0.0	1.05
0.24	0.19	0.0	1.01
0.27	0.21	0.0	1.14
0.31	0.26	0.0	1.19
0.34	0.28	0.0	1.23
0.39	0.32	0.0	1.20
0.39	0.31	0.0	1.14
0.41	0.37	0.0	1.13
0.42	0.35	0.0	1.09
0.43	0.38	0.0	1.05
0.43	0.38	0.0	1.03
0.43	0.39	0.0	1.06
0.44	0.35	0.0	1.02
0.45	0.36	0.0	1.03
0.46	0.42	0.0	1.05
0.47	0.41	0.0	0.99
0.47	0.41	0.0	1.00
0.47	0.41	0.0	1.00
0.49	0.42	0.0	0.98
0.49	0.45	0.0	0.97
0.50	0.45	0.0	0.96
0.03	0.03	0.0	0.11
0.25	0.23	0.0	0.62
0.28	0.23	0.0	0.69
0.31	0.25	0.0	0.76
0.32	0.29	0.0	0.76
0.33	0.27	0.0	0.76
0.41	0.35	0.0	0.89
0.42	0.37	0.0	0.92
0.43	0.35	0.0	0.90
0.44	0.39	0.0	0.96
0.45	0.39	0.0	0.91
0.47	0.40	0.0	0.97
0.48	0.43	0.0	0.96
0.49	0.42	0.0	0.99
0.50	0.40	0.0	0.97

5° gegen Σ

0.24	0.24	0.01	1.69
0.29	0.29	0.04	1.54
0.32	0.32	0.04	1.49
0.36	0.36	0.02	1.54
0.39	0.39	0.03	1.59
0.16	0.16	0.01	1.33
0.25	0.25	0.02	1.19
0.31	0.31	0.03	1.12
0.39	0.39	0.04	1.08
0.41	0.41	0.03	1.07
0.42	0.42	0.05	1.07
0.45	0.45	0.02	1.03
0.49	0.49	0.05	1.04
0.49	0.49	0.05	1.04
0.33	0.33	0.04	1.28
0.37	0.37	0.04	1.19
0.39	0.39	0.03	1.18
0.44	0.44	0.05	1.04
0.25	0.25	0.03	0.60
0.31	0.31	0.03	0.68
0.44	0.44	0.05	0.77
0.48	0.48	0.06	0.76

10° gegen Σ

0.23	0.23	0.04	1.71
0.24	0.24	0.03	1.72
0.26	0.26	0.05	1.61
0.34	0.34	0.07	1.51
0.34	0.34	0.05	1.54
0.42	0.42	0.06	1.58
0.43	0.43	0.08	1.58
0.17	0.17	0.03	1.31
0.26	0.26	0.05	1.14
0.33	0.33	0.06	1.09
0.36	0.36	0.08	1.08
0.40	0.40	0.06	1.08
0.41	0.41	0.05	1.06
0.44	0.44	0.09	1.10
0.47	0.47	0.10	1.11
0.26	0.26	0.05	1.17
0.31	0.31	0.05	1.30
0.37	0.37	0.06	1.15
0.38	0.38	0.05	1.15
0.45	0.45	0.06	1.03
0.46	0.46	0.09	0.96
0.49	0.49	0.11	0.94
0.11	0.11	0.02	0.36
0.18	0.18	0.03	0.50
0.50	0.50	0.07	0.79
0.50	0.50	0.10	0.77

15° gegen Σ

0.28	0.28	0.07	1.60
0.31	0.31	0.09	1.50
0.34	0.34	0.09	1.53
0.37	0.37	0.11	1.56
0.48	0.48	0.13	1.57
0.14	0.14	0.04	1.31
0.21	0.21	0.05	1.08
0.39	0.39	0.10	1.03
0.46	0.46	0.11	0.98
0.50	0.50	0.13	1.01
0.04	0.04	0.01	0.15
0.25	0.25	0.06	0.60
0.28	0.28	0.07	0.68
0.29	0.29	0.08	0.65
0.36	0.36	0.09	0.70
0.45	0.45	0.12	0.80
0.49	0.49	0.11	0.79

20° gegen Σ

0.22	0.22	0.08	1.76
0.42	0.42	0.15	1.56
0.48	0.48	0.16	1.63
0.13	0.13	0.05	1.34
0.18	0.18	0.07	1.29
0.13	0.13	0.04	0.62
0.04	0.04	0.02	0.14
0.38	0.38	0.14	0.81
0.44	0.44	0.15	0.88
0.44	0.44	0.16	0.93
0.45	0.45	0.17	0.91
0.47	0.47	0.18	0.91

25° gegen Σ

0.47	0.47	0.22	1.66
0.42	0.42	0.20	1.29
0.46	0.46	0.22	1.34
0.13	0.13	0.07	0.63
0.21	0.21	0.10	0.98
0.24	0.24	0.11	1.20
0.32	0.32	0.14	1.20
0.35	0.35	0.15	1.21
0.42	0.42	0.19	1.07
0.05	0.05	0.02	0.15
0.15	0.15	0.07	0.44
0.41	0.41	0.18	0.89

30° gegen Σ

0.06	0.06	0.04	1.40
0.12	0.12	0.07	1.34
0.21	0.21	0.13	1.28
0.23	0.23	0.14	1.34
0.31	0.31	0.16	1.30
0.33	0.33	0.21	1.31
0.34	0.34	0.21	1.31
0.48	0.48	0.31	1.38
0.02	0.02	0.01	0.09
0.15	0.15	0.08	0.75
0.19	0.19	0.12	0.93
0.25	0.25	0.13	1.24
0.25	0.25	0.14	1.22
0.31	0.31	0.20	1.23
0.39	0.39	0.23	1.07
0.41	0.41	0.23	1.20
0.48	0.48	0.29	1.14
0.35	0.35	0.19	0.95
0.43	0.43	0.23	0.97
0.44	0.44	0.25	1.01
0.49	0.49	0.31	1.03

35° gegen Σ

0.34	0.34	0.26	1.48
0.36	0.36	0.27	1.48
0.38	0.38	0.28	1.48
0.46	0.46	0.35	1.57
0.47	0.47	0.36	1.57
0.48	0.48	0.31	1.57
0.48	0.48	0.35	1.53
0.49	0.49	0.35	1.61
0.49	0.49	0.35	1.58
0.21	0.21	0.14	1.39
0.26	0.26	0.17	1.36
0.28	0.28	0.19	1.37
0.30	0.30	0.20	1.38
0.33	0.33	0.23	1.39
0.42	0.42	0.28	1.39
0.46	0.46	0.33	1.45
0.47	0.47	0.31	1.38
0.47	0.47	0.32	1.42
0.49	0.49	0.37	1.40
0.50	0.50	0.32	1.43
0.15	0.15	0.10	0.72
0.18	0.18	0.14	0.89
0.13	0.13	0.10	0.46
0.39	0.39	0.27	1.07
0.45	0.45	0.30	1.05

7. Literaturverzeichnis

/1/ Eldridge,J.E.,J.Phys. C (Solid State Phys.) 3 (1970) 1527

/2/ Bührer,W.,Hälg,W.,Phys.Stat.Sol.(b) 46 (1971) 679

/3/ Rolandson,S.,Raunio,G., Phys.Rev. B 4 (1971) 4617

/4/ Gurevich,I.I.,Tarasov,L.V.,Low-Energy Neutron Physics, North-Holland Publishing Company - Amsterdam, (1968)

/5/ Brockhouse,B.N., Phonons in Perfect Lattices and in Lattices with Point Imperfections, Stevenson,R.W.H. ed., Oliver & Boyd Edinburgh and London (1966), 127

/6/ Gläser,W.,Gompf,F., Nukleonik 12 (1969) 153

/7/ Gompf,F.,Reichardt,W.,Gläser,W.,Beckurts,K.H., Neutron inelastic scattering,Vol.II,IAEA Wien (1968) 417

/8/ Wilhelmi,G.,Gompf,F., Nucl.Instr.and Meth.81 (1970) 36

/9/ Gompf,F., KFK 1126 (1970)

/10/ Würz,G., Externer Bericht des Kernforschungszentrums Karlsruhe IAK-1/69-1 (1969)

/11/ Warren,J.L., Rev.Mod.Phys. 40 (1968) 38

/12/ Lowndes,R.P.,Martin,D.H., Proc.Roy.Soc.A 308 (1969) 473

/13/ Lowndes,R.P., Phys.Rev. B 1 (1970) 2754

/14/ Narayanan,P.S., Proc.Ind.Acad.Sc.A 42 (1955) 303

/15/ Stekhanov,A.I.,Korolkov,A.P. Soviet Phys. - Solid State 4 (1963) 2311

/16/ Cochran,W.,Cowley,R.A., Phonons in Perfect Crystals, Handbuch der Physik, Flügge,S. ed.,Bd. XXV/2a (1967) 59, Springer-Verlag Berlin-Heidelberg-New York

/17/ Kellermann,E.W., Phil.Trans.Roy.Soc. London 238 A (1940) 513; Proc.Roy.Soc. A 178 (1941) 17

/18/ Vetelino,J.F.,Mitra,S.S.,Namjoshi,K.V., Phys.Rev. B 6 (1970) 2167

/19/ Karo,A.M.,Hardy,J.R.,J.Chem.Phys. 48 (1968) 3173

/20/ Tessman,J.R.,Kahn,A.H.,Shockley,W., Phys.Rev. 92 (1953) 890

/21/ Szigeti,B., Trans.Faraday Soc. 45 (1949) 155

/22/ Szigeti,B., Proc.Roy.Soc. A 204 (1950) 51

/23/ Dick,B.G.,Overhauser,A.W., Phys.Rev. 112 (1958) 90

/24/ Woods,A.D.B.,Cochran,W.,Brockhouse,B.N., Phys.Rev. 131 (1963) 1030

/25/ Schröder,U., Solid State Commun. 4 (1966) 347

/26/ Mahler,G.,Engelhard,P., Phys.Stat.Sol.(b) 45 (1971) 543

/27/ Becker,C.R., Solid State Commun. 9 (1971) 13

/28/ Mahler,G.,Schröder,U.,Proc. of the Int. Conf. on Phonons, Rennes, France, Nusimovici M.A. ed., Flammarion sciences Paris, (1971) 89

/29/ Gilat,G.Dolling,G. Phys.Letters (Neth.) 8 (1964) 304

/30/ Born,M.,v.Kármán,Th., Phys.Zeitschr. 13 (1912) 297

/31/ Sorai,M.,Suga,H.,Seki,S., Bull. of the Chem.Soc. of Japan 41 (1968) 312

/32/ Sorai,M.,Journal of the Phys. Soc. of Japan 25 (1968) 421

/33/ Chang,Z.P., Barsch,G.R.,Miller,D.L., Phys. Status Solidi 23 (1967) 577

Dem Direktor des Instituts für Kernphysik der Universität Frankfurt, Herrn Prof. Dr. E. Schopper danke ich für seine Förderung und Unterstützung. Außerdem danke ich allen Mitarbeitern des Institutes, die zum Gelingen der Arbeit beigetragen haben. Dabei bin ich besonders den Herren Dr. M. Müllner und Dr. H. Jex für die wertvollen Hinweise und Diskussionen und das Interesse dankbar, mit dem sie den Fortgang der Arbeit verfolgten.

Herr Privatdozent Dr. W. Gläser und die Mitglieder des Institutes für Angewandte Kernphysik bei der Gesellschaft für Kernforschung in Karlsruhe stellten in großzügiger Weise Apparaturen und Einrichtungen des Institutes zur Verfügung und waren außerordentlich hilfsbereit. Dafür gilt ihnen mein herzlicher Dank.

L e b e n s l a u f

Ich wurde am 28. November 1941 als Sohn des Kaufmanns Edmund Daubert und seiner Ehefrau Irene, geb. Wildhagen, in Zwickau geboren.

In Zwickau besuchte ich die Grundschule und die Oberschule bis unsere Familie 1958 nach Frankfurt am Main zog. Danach wurde ich Internatsschüler der Martin-Luther-Schule in Rimbach im Odenwald, an der ich 1962 die Reifeprüfung ablegte.

Im Sommersemester 1962 begann ich das Studium der Physik an der Johann Wolfgang Goethe - Universität in Frankfurt am Main. Im Sommersemester 1965 studierte ich an der Universität Wien und setzte danach das Studium in Frankfurt fort. Die Diplomarbeit "Streuung thermischer Neutronen an Eis-Einkristallen" fertigte ich am Institut für Kernphysik an und legte die Diplomprüfung am 13. November 1968 ab.

In den Jahren 1969 bis 1971 war ich Gast am Institut für Angewandte Kernphysik der Gesellschaft für Kernforschung in Karlsruhe.

Ich bin wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Kernphysik, das von Prof. Dr. E. Schopper geleitet wird.

Meine akademischen Lehrer, denen ich Förderung und Ausbildung verdanke, sind die Herren Professoren R.Baer, W.Benz, H.Dänzer, W.Franz, W.Gläser, W.Gleissberg, W.Greiner, H.Hartmann, W.Lohmann, W.Martienssen, B.Mrowka, A.Münster, H.Müser, P.Royen, E.Schopper und G.Süßmann.